

## Bibliographic Information

**Phthalimide derivatives as agrochemical fungicides.** Aoki, Atsushi; Endo, Toshimitsu; Ueda, Takayuki; Nakanishi, Itsuro. (Sankyo Co., Ltd., Japan; Hokkai Sankyo Co., Ltd.). Jpn. Kokai Tokkyo Koho (1986), 49 pp. CODEN: JKXXAF JP 61246161 A2 19861101 Showa. Patent written in Japanese. Application: JP 85-87946 19850424. CAN 106:119693 AN 1987:119693 CAPLUS (Copyright 2005 ACS on SciFinder (R))

## Patent Family Information

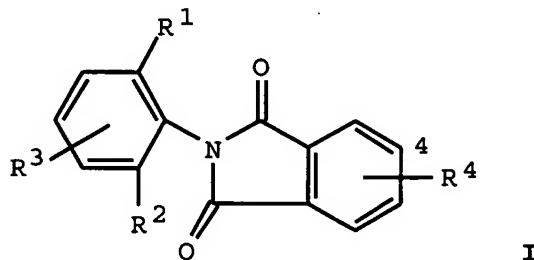
<u>Patent No.</u>	<u>Kind</u>	<u>Date</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
JP 61246161	A2	19861101	JP 1985-87946	19850424
JP 06078308	B4	19941005		

Priority Application

JP 1985-87946 19850424

## Abstract

Phthalimide derivs. (I; R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> = C1-6 alkyl, C2-6 alkenyl; R<sub>3</sub> = H, halo, C1-6 alkyl; R<sub>4</sub> = CO<sub>2</sub>H, cyano, NO<sub>2</sub>, etc.), effective agrochem. fungicides at 12.5 ppm, are prepd. Thus, 1.8 g 2,6-(Me<sub>2</sub>CH)<sub>2</sub>C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> was added to a soln. of 1.92 g trimellitic anhydride in MeCOCH<sub>2</sub>CHMe<sub>2</sub> and refluxed 3 h to give 3 g I (R<sub>1</sub> = R<sub>2</sub> = Me<sub>2</sub>CH, R<sub>3</sub> = H, R<sub>4</sub> = 4-CO<sub>2</sub>H).



**BLANK PAGE**

## ⑫ 公開特許公報(A)

昭61-246161

⑤ Int. Cl.<sup>4</sup>C 07 D 209/48  
A 01 N 37/32  
41/04  
43/08  
43/20

識別記号

1 0 1

庁内整理番号

7306-4C  
8519-4H  
A-7215-4H

④ 公開 昭和61年(1986)11月1日

※審査請求 未請求 発明の数 2 (全49頁)

④ 発明の名称 フタルイミド誘導体およびそれを含有する農薬用殺菌剤

⑪ 特 願 昭60-87946

⑫ 出 願 昭60(1985)4月24日

⑬ 発 明 者 青 木 篤 札幌市豊平区豊平7条8丁目2番1号 北海三共株式会社内

⑭ 発 明 者 遠 藤 利 光 札幌市豊平区豊平7条8丁目2番1号 北海三共株式会社内

⑮ 発 明 者 上 田 隆 之 東京都品川区広町1丁目2番58号 三共株式会社内

⑯ 発 明 者 中 西 逸 朗 滋賀県野洲郡野洲町野洲1041 三共株式会社内

⑰ 出 願 人 三 共 株 式 会 社 東京都中央区日本橋本町3丁目1番地の6

⑱ 出 願 人 北 海 三 共 株 式 会 社 札幌市豊平区豊平7条8丁目2番1号

⑲ 代 理 人 弁 理 士 梶 出 庄 治

最終頁に続く

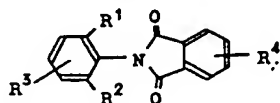
## 明 細 書

## 1. 発明の名称

フタルイミド誘導体およびそれを含有する農薬用殺菌剤

## 2. 特許請求の範囲

(1) 下記一般式を有する化合物：

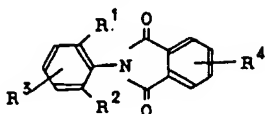


〔式中、 $R^1$  および  $R^2$  は互いに同一または異なつて、それぞれ  $C_1-C_6$  アルキル基または  $C_2-C_6$  アルケニル基を示し、 $R^3$  は水素原子、ハロゲン原子または  $C_1-C_6$  アルキル基を示し、 $R^4$  はカルボキシ基、チオカルボキシ基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、1個または2個の脂肪族カルボン酸アシル置換分を有するアミノ基、複素環基、脂肪族カルボン酸アシル基、 $C_2-C_4$  アルケニル基、または  $C_1-C_4$  置換アルキルもしくは  $C_2-C_4$  置換アルケニル基を示し、当該置換分は1個もしくは2個であつて、次の群から

選択される：基  $-XR^5$  ( $X$  は酸素原子、硫黄原子または  $-NH-$  を示し、 $R^5$  は水素原子、 $C_3-C_8$  シクロアルキル基、 $C_2-C_4$  アルケニル基、 $C_2-C_4$  アルキニル基、アリール基、カルボキシ基、アシル基、 $C_1-C_6$  アルキル基、または少なくとも1個のシアノ、ニトロ、 $C_1-C_4$  アルコキシ、アリール、アリーロキシもしくは  $C_1-C_4$  アルキルアミノ置換分を有する  $C_1-C_6$  アルキル基)、ハロゲン原子、複素環基、カルボキシ基、チオカルボキシ基、シアノ基、脂肪族カルボン酸アシル基、芳香族カルボン酸アシル基、ニトロ基、ジ( $C_1-C_3$  アルコキシ)ホスホリル基およびヒドロキシイミノ基〕並びに、 $R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基、またはカルボキシもしくはチオカルボキシ基を含有する基であるときは、それらの対応するハライド、エステル、アミドおよびそれらの塩、または  $R^4$  が水酸基もしくはメルカプト基を含有する基であるときは、それらのエステル、または  $R^4$  が置換もしくは無置換のアミノ基であるときはそれらの酸付加塩。

**BLANK PAGE**

(2) 下記一般式を有する化合物を有効成分とする農園芸用殺菌剤：

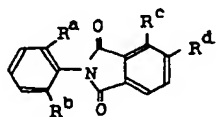


〔式中、 $R^1$  および  $R^2$  は互いに同一または異なつて、それぞれ  $C_1-C_6$  アルキル基または  $C_2-C_6$  アルケニル基を示し、 $R^3$  は水素原子、ハロゲン原子または  $C_1-C_6$  アルキル基を示し、 $R^4$  はカルボキシ基、チオカルボキシ基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、1個または2個の脂肪族カルボン酸アシル置換分を有するアミノ基、複素環基、脂肪族カルボン酸アシル基、 $C_2-C_4$  アルケニル基、または  $C_1-C_4$  置換アルキルもしくは  $C_2-C_4$  置換アルケニル基を示し、当該置換分は1個もしくは2個であつて、次の群から選択される：基  $-XR^5$  ( $X$  は酸素原子、硫黄原子または  $-NH-$  を示し、 $R^5$  は水素原子、 $C_3-C_8$  シクロアルキル基、 $C_2-C_4$  アルケニル基、 $C_2-C_4$  アルキニル基、アリール基、カルボキ

それらを有効成分とする農園芸用殺菌剤に関するものである。

#### 従来の技術

本願発明のフタルイミド誘導体に類似し、農業用殺菌剤として知られた化合物は、特開昭50-25738号公報、特開昭51-54924号公報および特開昭52-125625号公報等に記載されており、それらの化合物は次式で示される。



上記式において、特開昭50-25738号に記載された化合物は、 $R^a$  および  $R^b$  がそれぞれエチル基またはイソプロピル基を示し、 $R^c$  および  $R^d$  はともに水素原子である。特開昭51-54924号に記載された化合物は、 $R^a$  および  $R^b$  がそれぞれエチル基またはイソプロピル基を示し、 $R^c$  および  $R^d$  は、一方が水素原子を、他方が塩素原子またはメチル基を示す。特開昭52-125625

シ基、アシル基、 $C_1-C_6$  アルキル基、または少なくとも1個のシアノ、ニトロ、 $C_1-C_4$  アルコキシ、アリール、アリーロキシもしくは  $C_1-C_4$  アルキルアミノ置換分を有する  $C_1-C_6$  アルキル基)、ハロゲン原子、複素環基、カルボキシ基、チオカルボキシ基、シアノ基、脂肪族カルボン酸アシル基、芳香族カルボン酸アシル基、ニトロ基、ジ( $C_1-C_3$  アルコキシ)ホスホリル基およびヒドロキシイミノ基〕並びに  $R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基、またはカルボキシもしくはチオカルボキシ基を含有する基であるときは、それらの対応するハライド、エステル、アミドおよびそれらの塩、または  $R^4$  が水酸基もしくはメルカプト基を含有する基であるときは、それらのエステル、または  $R^4$  が置換もしくは無置換のアミノ基であるときはそれらの酸付加塩。

#### 3. 発明の詳細な説明

##### 産業上の利用分野

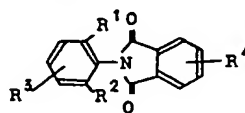
この発明は新規なフタルイミド誘導体および

号に記載された化合物は、 $R^a$  および  $R^b$  がそれぞれエチル基またはイソプロピル基を示し、 $R^c$  および  $R^d$  は、一方が水素原子を、他方がメトキシ基を示す。

本発明者等は、フタルイミド化合物について種々探索した結果、一群の新規なフタルイミド誘導体が、上記した公知の類似化合物に匹敵する殺菌活性を示し、ことに根こぶ病として知られるアブラナ科作物の重要病害の起因菌である *Plasmodiophora brassicae* に対して、公知化合物を凌駕する活性を有することを見出し、本発明を完成した。

##### 問題点を解決するための手段

すなわち、本発明は、下記的一般式(I)を有する新規なフタルイミド誘導体およびそれらを含有する農園芸用殺菌剤を提供するものである。



〔式中、 $R^1$  および  $R^2$  は互いに同一または異なつて、それぞれ  $C_1-C_6$  アルキル基または  $C_2-C_6$  アルケニル基を示し、 $R^3$  は水素原子、ハロゲン原子または  $C_1-C_6$  アルキル基を示し、 $R^4$  は、ニトロ基、アミノ基、1個または2個の脂肪族カルボン酸アシル置換分を有するアミノ基、複素環基、脂肪族カルボン酸アシル基、 $C_2-C_4$  アルケニル基、または  $C_1-C_4$  置換アルキルもしくは  $C_2-C_4$  置換アルケニル基を示し、当該置換分は1個もしくは2個であつて、次の群から選択される：基  $-XR^5$  ( $X$  は酸素原子、硫黄原子または  $-NH-$  を示し、 $R^5$  は水素原子、 $C_3-C_8$  シクロアルキル基、 $C_2-C_4$  アルケニル基、 $C_2-C_4$  アルキニル基、アリール基、カルボキシ基、アシル基、 $C_1-C_6$  アルキル基、または少なくとも1個のシアノ、ニトロ、 $C_1-C_4$  アルコキシ、アリール、アリーロキシもしくは  $C_1-C_4$  アルキルアミノ置換分を有する  $C_1-C_6$  アルキル基)、ハロゲン原子、複素環基、カルボキシ基、チオカルボキシ基、シアノ基、脂肪族カルボン酸ア

を示す場合は、式(I)の化合物は塩を形成しうる。塩の例としては、たとえば、アルカリ金属、アルカリ土類金属および他の金属、アンモニウム、4級アンモニウムおよび有機アミン類の塩があげられる。好適な塩の例としては、たとえば、ナトリウム、カリウム等のアルカリ金属塩、カルシウム、マグネシウム等のアルカリ土類金属塩、アルミニウム、鉄等の3価の金属塩、アンモニウム塩、テトラブチルアンモニウム等のテトラ( $C_1-C_6$  アルキル)アンモニウム塩で代表される4級アンモニウム塩、ジ-もしくはトリ-( $C_1-C_6$  アルキル)アミン、ことにジ-もしくはトリ-( $C_1-C_4$  アルキル)アミンもしくは環状アミン塩、たとえばジエチルアミン、ジプロピルアミン、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリプロピルアミン、ピリジン塩等で代表される有機アミン塩等があげられる。

$R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基、または1個もしくは2個のカルボキシもしくはチオカルボキシを含有するアルキル基もしくはアル

シル基、芳香族カルボン酸アシル基、ニトロ基、ジ( $C_1-C_6$  アルコキシ)ホスホリル基およびヒドロキシイミノ基〕並びに、 $R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基、またはカルボキシもしくはチオカルボキシ基を含有する基であるときは、それらの対応するハライド、エステル、アミドおよびそれらの塩、または  $R^4$  が水酸基もしくはメルカプト基を含有する基であるときは、それらのエステル、または  $R^4$  が置換もしくは無置換のアミノ基であるときはそれらの酸付加塩。

式(I)の化合物がエステルまたは塩である場合エステル形成に使用される酸またはアルコール並びに塩を形成する酸または塩基は広範囲な化合物から選択することができ、形成されたエステルや塩が農薬上許容されるものであれば特に限定はない。

$R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基、または1個もしくは2個のカルボキシもしくはチオカルボキシを含有するアルキル基もしくはアルケニル基を示す場合、並びに  $R^5$  がカルボキシ基

ケニル基を示す場合、並びに  $R^5$  がカルボキシ基を示す場合は、式(I)の化合物はエステルを形成しうる。 $R^4$  で示される、かようにエステル化された基は、~~以下、 $X^1$  および  $X^2$  は  $X^1, X^2$  である。~~

式  $-C(:X^1)X^2R^6$  または  $-A[-C(:X^1)X^2R^6]_n$  で、そして  $R^5$  の場合は、式  $-COOR^6$  で示される。上記の各式中、 $X^1$  の一方は酸素原子を示し、他方は酸素原子または硫黄原子を示す。 $A$  は  $C_1-C_5$  のアルキレン基、アルキリデン基、アルケニレン基またはアルケニリデン基を示すか、 $n$  が1の場合は、これらの基は、 $R^4$  のアルキル基またはアルケニル基において特定された置換基の1個を示す。 $n$  は1または2である。 $R^6$  はアルキル基、置換アルキル基(当該置換分は次の群から選択される：ハロゲン原子、シアノ基、水酸基、 $C_1-C_6$  アルコキシ基、 $C_1-C_6$  アルキルチオ基、フェノキシ基、カルボン酸アシル基、エポキシ基、カルボキシ基、( $C_1-C_6$  アルコキシ)カルボニル基、ジ( $C_1-C_6$  アルキル)アミ

ノ基、および窒素原子または酸素原子から選択される少なくとも一種のヘテロ原子を含有する5または6員環の複素環基)、 $C_2-C_6$  アルケニル基、 $C_2-C_6$  アルキニル基、 $C_3-C_8$  シクロアルキル基、少なくとも1個の $C_1-C_6$  アルキル置換分を有する $C_3-C_8$  シクロアルキル基、アラルキル基、置換アラルキル基(当該置換分は、少なくとも1個のハロゲン原子、 $C_1-C_6$  アルキル基およびニトロ基から選択される)、フェニル基、置換フェニル基(当該置換分は、少なくとも1個であり、次の群から選択される基である: ハロゲン原子、ニトロ基、 $C_1-C_6$  アルキル基、 $C_2-C_6$  アルケニル基、 $C_1-C_6$  アルコキシ基、 $C_1-C_6$  アルカノイル基、( $C_1-C_6$  アルコキシ)カルボニル基、ジ( $C_1-C_6$  アルキル)アミノ基、 $C_1-C_6$  アルカノイルアミノ基およびシアノ基)、ジ( $C_1-C_6$  アルキル)アミノ基、または窒素原子および酸素原子から選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含有する5または6員環の複素環基を示す。

ベンゾイルオキシエチル、2-アセトキシエチル、2,3-エポキシプロピル、カルボキシメチル、2-カルボキシエチル、エトキシカルボニルメチル、2-ジエチルアミノエチル、2-ジメチルアミノ-1-メチルエチル、3-ピリジルメチル、オキソラン-2-イルメチル等があげられる。上記の置換アルキル基中、少なくとも1個のハロゲン、 $C_1-C_4$  アルコキシ、 $C_1-C_4$  アルキルチオまたは( $C_1-C_4$  アルコキシ)カルボニル置換分を有する $C_1-C_4$  アルキル基が好ましい。

$R^6$  がアルケニル基を示す場合、それは好適には3個または4個の炭素原子を有し、たとえばアリル、メタリルまたは2-ブテニルである。

$R^6$  がアルキニル基を示す場合、それは好適には3個または4個の炭素原子を有し、好適には2-プロピニルである。

$R^6$  がシクロアルキル基または置換シクロアルキル基である場合、シクロアルキル自体は好適には5個または6個の炭素原子を有し、最も好

$R^6$  がアルキル基を示す場合、それは1ないし20個の炭素原子を有する直鎖状または分岐鎖状のアルキルでありえ、たとえば、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、sec-ブチル、t-ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、ドデシル、テトラデシル、ペンタデシル、オクタデシル等であり、ことに1ないし10個の炭素原子を有するアルキル基である場合が好ましい。

$R^6$  が置換アルキル基を示す場合、アルキル自体は上記のものでありえ、好ましくは $C_1-C_4$  アルキル基である。当該置換アルキル基の例としては、たとえば、2-クロルエチル、2,2-ジクロルエチル、2,2,2-トリクロルエチル、2-シアノエチル、2-ヒドロキシエチル、4-ヒドロキシブチル、2,3-ジヒドロプロピル、エトキシメチル、2-メトキシエチル、2-エトキシエチル、2-プロボキシエチル、2-エチルチオエチル、2-フェノキシエチル、2-

適にはシクロヘキシルまたは2-メチルシクロヘキシルである。

$R^6$  がアラルキル基または置換アラルキル基を示す場合、当該アラルキル基自体は、好適にはベンジル、フェネチルまたはフェニルプロピルであり、最も好適には、ベンジル、4-メチルベンジル、4-ニトロベンジル、4-クロルベンジル、フェネチルまたは3-フェニルプロピルである。

$R^6$  が置換フェニル基を示す場合、それは好適には、2-クロルフエニル、4-クロルフエニル、2,4-ジクロルフエニル、2,5-ジクロルフエニル、2,6-ジクロルフエニル、3,5-ジクロルフエニル、2,3,4-トリクロルフエニル、2,3,5-トリクロルフエニル、2,4,6-トリクロルフエニル、3,4,5-トリクロルフエニル、2-メチルフエニル、2,4-ジメチルフエニル、2,6-ジメチルフエニル、3,4-ジメチルフエニル、3,5-ジメチルフエニル、2-クロル-6-メチルフエニル、4-クロル-2-メチル

フェニル、4-クロル-3-メチルフエニル、2,4-ジクロル-6-メチルフエニル、2,6-ジクロル-4-メチルフエニル、4-クロル-3,5-ジメチルフエニル、4-クロル-2-ニトロフェニル、2-クロル-4-ニトロフェニル、4-クロル-3,5-ジメチル-6-ニトロフェニル、2-アリルフエニル、2-メトキシフェニル、3-メトキシフェニル、4-ホルミルフエニル、4-アセチルフエニル、4-メトキシカルボニルフエニル、4-ブトキシカルボニルフエニル、3-ジメチルアミノフェニル、4-アセチルアミノフェニルおよび4-シアノフェニルである。

$R^6$  がジアルキルアミノ基を示す場合、それは好適には、ジメチルアミノ、ジエチルアミノまたはジプロピルアミノである。

$R^6$  が複素環基を示す場合、それは5もしくは8員環であつて、窒素原子および酸素原子から成る群の少なくとも1個を含有する。複素環自身が置換されている場合、置換分としては1な

ニル基を示す場合、並びに  $R^5$  がカルボキシ基を示す場合は、式(I)の化合物は酸アミドを形成しうる。

すなわち式(I)において、 $R^4$  が基  $-CX^1, NR^7R^8$ , ことに  $-CO, NR^7R^8$  または基  $-A(CX^1, NR^7R^8)_n$  を示すか、あるいは  $R^5$  が基  $-CO, NR^7R^8$  を示す場合である。上記の各式中、 $A, X^1$  および  $n$  は前記したものと同意義である。 $R^7$  は水素原子、 $C_1-C_6$  アルキル基、 $C_1-C_6$  ヒドロキシアルキル基または  $C_2-C_6$  アルケニル基を示す。 $R^8$  は水素原子、 $C_1-C_6$  アルキル基、置換  $C_1-C_6$  アルキル基（次の群から選択される少なくとも1個の置換分を有する：ハロゲン原子、シアノ基、水酸基、 $C_1-C_6$  アルコキシ基、フェノキシ基、少なくとも1個のハロゲン置換分を有するフェノキシ基、カルボキシ基、( $C_1-C_6$  アルコキシ)カルボニル基、ジ( $C_1-C_6$  アルキル)アミノ基および窒素原子および酸素原子から選択されるヘテロ原子を少なくとも1個含有する5または8員環の複素環基)、 $C_2-C_6$  アルケニル基、 $C_2-$

いし3個の  $C_1-C_6$  アルキルが好ましい。置換もしくは非置換の複素環の例としては、たとえば5-メチルイソオキサゾール-3-イル、2-ビリミジル、2-ピリジル、3-ピリジルおよび1-メチル-3-ピペリジルがあげられる。

式(I)の化合物において、 $R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基、または1個もしくは2個のカルボキシもしくはチオカルボキシを含有するアルキルもしくはアルケニル基を示す場合は、酸ハライドを形成しうる。酸ハライドは、式(I)において、 $R^4$  が式  $-CX^1 \cdot Hal$  または  $-A(-CX^1, Hal)_n$  であらわされる場合であつて、式中  $A$  および  $n$  は前記と同意義を有し、 $X^1$  は酸素原子または硫黄原子を示し、そして  $Hal$  はハロゲン原子、ことに塩素、弗素、臭素または炭素を示し、好適には塩素または臭素である。

$R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基、または1個もしくは2個のカルボキシもしくはチオカルボキシを含有するアルキルもしくはアルケ

$C_6$  アルキニル基、 $C_3-C_8$  シクロアルキル基、少なくとも1個の  $C_1-C_6$  アルキル置換分を有する  $C_3-C_8$  シクロアルキル基、アラルキル基、置換アラルキル基（当該置換分は、少なくとも1個のハロゲン原子、 $C_1-C_6$  アルキル基およびニトロ基から選択される）、フェニル基、置換フェニル基（当該置換分は少なくとも1個のハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、 $C_1-C_6$  アルキル基、トリフルオルメチル基、 $C_1-C_6$  アルコキシ基および( $C_1-C_6$  アルコキシ)カルボニル基から選択される）、水酸基、 $C_1-C_6$  アルコキシ基、 $C_1-C_6$  アルカノイルオキシ、 $C_1-C_6$  アルカノイル基、少なくとも1個の  $C_1-C_6$  アルコキシ置換分を有する  $C_1-C_6$  アルカノイル基、( $C_1-C_6$  アルコキシ)チオカルボニル基、( $C_1-C_6$  アルキル)チオカルバモイル基、フェニルチオカルバモイル基、少なくとも1個のハロゲン置換分をフェニル部分に含有するフェニルチオカルバモイル基、アミノ基、ジ( $C_1-C_6$  アルキル)アミノ基、アニリノ基または窒素原



子、硫黄原子および酸素原子から選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含有する5または6員環の複素環基を示すか、あるいは、 $R^7$ と $R^8$ とはそれらが結合している窒素原子とともにピペリジノ基またはモルホリノ基を形成する。

上記の基 $-CX^1;NR^7R^8$ および $-CO,NR^7R^8$ において、 $-NR^7R^8$ 部分は、好適にはアミノ、メチルアミノ、エチルアミノ、プロピルアミノ、イソプロピルアミノ、ブチルアミノ、イソブチルアミノ、sec-ブチルアミノ、tert-ブチルアミノ、ペンチルアミノ、ヘキシルアミノ、3-クロロプロピルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジプロピルアミノ、ジイソプロピルアミノ、エチルブチルアミノ、2-クロルエチルアミノ、シアノメチルアミノ、2-シアノエチルアミノ、ヒドロキシメチルアミノ、2-ヒドロキシエチルアミノ、2-ヒドロキシエチル(メチル)アミノ、2-ヒドロキシエチル(エチル)アミノ、ジ(2-ヒドロキシエチル)アミノ、2,3,4,5,6-ペンタヒドロキシヘキシル

ノ、3-トリフルオルメチルアニリノ、4-シアノアニリノ、2-メトキシアニリノ、3-メトキシアニリノ、4-メトキシアニリノ、2-エトキシアニリノ、3-エトキシアニリノ、4-エトキシアニリノ、2-メトキシカルボニルアニリノ、ヒドロキシアミノ、メトキシアミノ、アセトキシアミノ、3-ピリジルメチルアミノ、4-ピリジルメチルアミノ、ホルミル(メチル)アミノ、メトキシアセチル(メチル)アミノ、メトキシチオカルボニルアミノ、3-メチルチオウレイド、3-(4-クロルフエニル)チオウレイド、ヒドラジノ、1-メチルヒドラジノ、2-ジメチルヒドラジノ、2-フェニルヒドラジノ、アセトヒドラジノ、ピペリジノアミノ、モルホリノアミノ、2-ピリミジルアミノ、2-ピリジルアミノ、3-ピリジルアミノ、4-ピリジルアミノ、2-チアゾリルアミノ、ピペリジノまたはモルホリノでありえ、更に好適にはアミノ、( $C_1-C_6$ アルキル)アミノ、( $C_1-C_6$ アルコキシ)アミノまたはモルホリノアミ

(メチル)アミノ、2-メトキシエチルアミノ、2-(2,6-ジクロルフエノキシ)エチルアミノ、カルボキシメチルアミノ、メトキシカルボニルメチルアミノ、2-(ジメチルアミノ)エチルアミノ、2-(ジイソプロピルアミノ)エチルアミノ、3-(ジメチルアミノ)プロピルアミノ、2-モルホリノエチルアミノ、アリルアミノ、シアリルアミノ、2-プロビニルアミノ、シクロペンチルアミノ、シクロヘキシルアミノ、2,3-ジメチルシクロヘキシルアミノ、ベンジルアミノ、4-クロルベンジルアミノ、4-ニトロベンジルアミノ、4-メチルベンジルアミノ、フェネチルアミノ、 $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジルアミノ、アニリノ、4-クロルアニリノ、3,4-ジクロルアニリノ、3-クロル-2-ヒドロキシアニリノ、2-ヒドロキシアニリノ、3-ヒドロキシアニリノ、4-ヒドロキシアニリノ、4-ニトロアニリノ、4-メチルアニリノ、2,6-ジメチルアニリノ、2,6-ジエチルアニリノ、2,6-ジイソプロピルアニリ

ノである。

式(I)の化合物において、 $R^4$ が1個または2個の水酸基もしくはメルカプト基を有するアルキル基もしくはアルケニル基であるものはアルコールまたはチオールであり、それ故、酸とエステルを形成しうる。 $R^4$ がヒドロキシイミノ基を有するアルキル基である場合も同様である。これらの化合物は、式(I)において、 $R^4$ が基 $-A(X^1R^9)_n$ または基 $-A=N-OR^9$ を示す。式中、 $A$ ,  $X^1$ および $n$ は前記したものと同意義であり、 $R^9$ はカルボン酸、スルホン酸またはリン酸から誘導されるアシル基を示す。

$R^9$ がカルボン酸から誘導されるアシル基を示す場合、それは脂肪族または芳香族アシル基でありうる。脂肪族アシル基は好適には1ないし7、さらに好適には2ないし4個の炭素原子を含有し、アルカノイル、ハロアルカノイル、アルコキシアルカノイルまたはアルコキシカルボニルでありうる。好適なアルカノイル基は、たとえば、ホルミル、アセチル、プロピオニル、

ブチリル、イソブチリル、バレリル、イソバレリル、ピバロイル、ヘキサノイル、トリクロルアセチル、トリフルオルアセチル、メトキシアセチル、メトキシカルボニルおよびエトキシカルボニル等があげられる。芳香族アシル基は好適にはアリールカルボニル基であり、アリールは好適にはフェニル基であつて、 $C_1-C_4$ アルキル(たとえばメチル、エチル、*n*-ブチル)およびハロゲン(たとえば塩素)から選択される1ないし3個の置換分を有していてもよい。好適な芳香族アシル基は、ベンゾイル、トルオイルおよび $o$ -,  $m$ -もしくは $p$ -クロルベンゾイルである。

$R^9$ がスルホン酸から誘導されるアシル基である場合、それは好適にはアルカンスルホニル基であつて、たとえばメタルスルホニルおよびエタンスルホニルがあげられる。

$R^9$ がリン酸から誘導されるアシル基である場合、それは好適にはジ( $C_1-C_3$ アルコキシ)ホスホリル基であつて、たとえばジメトキシホス

または8個であつて、うち少なくとも1個は窒素原子、酸素原子および硫黄原子から選択されるヘテロ原子である。好ましくは環原子のうち1, 2, 3または4個がヘテロ原子である。複素環自身は置換されていてもよく、置換されている場合は、好適には1ないし3個の $C_1-C_4$ アルキル置換分(たとえば、メチル、エチル、プロピル、ブチル等であつて、メチルが好適である)を有する。

$R^4$ で示される複素環基の例は、たとえば、ジオキソラニル基(好適には1, 3-ジオキソラニル、より好適には1, 3-ジオキソラン-2-イル)、オキシラニル基、オキサゾリニル基(好適には2-オキサゾリニル基)、オキサジニル基およびそのジヒドロ、アナログ(好適には1, 3-オキサジニル、より好適には1, 3-オキサジン-2-イルおよびそれらのアナログ、たとえば4, 5-ジヒドロ-1, 3-オキサジン-2-イル)、オキサジアゾリル基およびアルキルおよび/またはオキソ-置換オキサジアゾリル

ホリルおよびジエトキシホスホリルがあげられる。

$R^4$ が1個または2個の脂肪族カルボン酸アシル置換分を有するアミノ基、脂肪族カルボン酸アシル基または1個もしくは2個の脂肪族カルボン酸アシル置換分を有する $C_1-C_4$ アルキル基もしくは $C_2-C_4$ アルケニル基である場合、また $R^5$ がアシル基を示す場合は、当該アシル基は、好適には前記した脂肪族アシル基、ことに $R^9$ で示される基で例示されたものから選択される。

$R^4$ で示されるカルボン酸アシルで好適な他のものは、1または2個の( $C_1-C_4$ アルコキシ)カルボニル、たとえばメトキシカルボニルもしくはエトキシカルボニル置換分を有する $C_1-C_6$ アルカノイル基および $C_3-C_6$ アルケノイル基であつて、たとえば2, 2-ジ(エトキシカルボニル)アセチルおよび2, 2-ジ(エトキシカルボニル)ペント-4-エノイルである。

$R^4$ が複素環基を示す場合、環を構成する原子は好適には3ないし6個、より好適には3, 5

基(ことに1, 3, 4-および1, 2, 4-オキサジアゾリルおよびそれらが置換されたもの、たとえば1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル、2-メチル-1, 3, 4-オキサジアゾール-5-イルおよび5-オキソ-1, 2, 4-オキサジアゾール-3-イル)並びにテトラゾリル基およびアルキル置換テトラゾリル基(ことに、1H-テトラゾール-5-イル、1-メチル-1H-テトラゾール-5-イルおよび2-メチル-2H-テトラゾール-5-イル)である。

$R^4$ が $C_2-C_4$ アルケニル基または置換 $C_2-C_4$ アルケニル基を示す場合、または $R^5$ が $C_2-C_4$ アルケニル基を示す場合は、当該アルケニル基は、好適にはビニル、アリル、1-プロペニル、イソプロペニル、1-ブテニル、2-ブテニルまたは3-ブテニルであり、より好適にはビニル、1-プロペニルまたは1-ブテニルである。

$R^4$ が置換 $C_1-C_4$ アルキル基を示す場合は、当該アルキル基は、好適にはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、

sec-ブチルまたはi-ブチルであり、より好適にはメチル、エチルまたはプロピルである。

$R^4$  または  $R^5$  がハロゲン置換アルキル基を示す場合は、当該ハロゲン原子は好適には弗素、塩素、臭素または沃素であり、より好適には塩素または臭素である。

$R^4$  がシ ( $C_1-C_3$  アルキル) ホスホノ置換分を有するアルキル基またはアルケニル基を示す場合は、当該置換分は、好適には  $R^4$  において示したものから選択される。

$R^4$  が複素環置換分を有するアルキル基を示す場合、当該複素環基は、好適には  $R^6$  で示したものであるが、この場合は、さらに好適にはアゾリル基、すなわち少なくとも1個の窒素原子をヘテロ原子として含有する5員環であつて、最も好適にはイミダゾリルまたは1,2,4-トリアゾリルである。

$R^5$  が少なくとも1個の  $C_1-C_4$  アルコキシ置換分を有するアルキル基を示す場合、当該アルコキシ基は、好適にはメトキシ、エトキシ、ブ

トン酸、スルホン酸またはリン酸から誘導され、その好適な例は、 $R^9$  において示した対応する基と同様である。

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  または  $R^5$  が  $C_1-C_6$  アルキル基を示す場合、このものは直鎖状または分岐鎖状でありえ、好適には1ないし4個の炭素原子を有し、たとえばメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、sec-ブチル、i-ブチル、ペンチル、イソペンチル、ヘキシルおよび2,2-ジメチルブチル等があげられる。これらのうち、メチル、エチル、イソプロピルおよびsec-ブチルがより好適である。 $R^1$  と  $R^2$  に関して最も好適なのは、 $R^1$  および  $R^2$  が共にイソプロピルである場合、および  $R^1$  がエチルで  $R^2$  がsec-ブチルである場合である。

$R^1$  および  $R^2$  が  $C_2-C_6$  アルケニル基を示す場合、このものは直鎖状または分岐鎖状でありえ、好適には3個もしくは4個の炭素原子を有し、たとえばアリル、メタリル、1-メチルプロペニルおよび2-ブテニルがあげられる。

ロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシまたはi-ブトキシである。

$R^5$  が少なくとも1個のアリールもしくはアリロキシ置換分を有するアルキル基を示す場合、および  $R^5$  がアリール基を示す場合は、当該アリール基は芳香族炭素環基（好ましくはフェニルまたはナフチル、より好ましくはフェニル）であり、1ないし3個のハロゲン原子（ことに塩素または臭素）および  $C_1-C_4$  アルキル基（ことにメチルまたはエチル）から選択される置換分を有していてもよい。

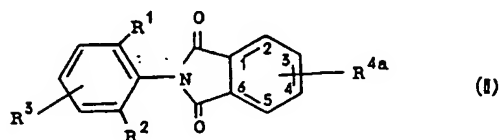
$R^5$  が少なくとも1個の  $C_1-C_4$  アルキルアミノ置換分を有するアルキル基を示す場合、当該置換分は、好適にはメチルアミノ、エチルアミノ、プロピルアミノ、ブチルアミノまたはi-ブチルアミノである。

$R^5$  が  $C_3-C_8$  シクロアルキル基または  $C_2-C_4$  アルキニル基を示す場合、これらの好適な基は、 $R^6$  において示した対応する基と同様である。

$R^5$  がアシル基を示す場合、当該アシルはカル

$R^3$  がハロゲン原子を示す場合、このものは塩素、臭素、弗素または沃素でありうる。しかしながら、 $R^3$  は水素であることが最も好ましい。

本願化合物のうち、好適なものは下記の式(II)で示される。



上記式(II)において、 $R^1$ ,  $R^2$  および  $R^3$  は前記したものと同意義であり、 $R^{4a}$  は基  $-CO \cdot R^{30}$ ,  $-CO \cdot X^1 R^{11}$ ,  $-A-COX^1 R^{31}$ ,  $-CONR^7 R^8$ ,  $-A-CONR^7 R^8$ ,  $-A-NHR^{32}$ ,  $-A-X^1 R^{33}$ ,  $-A-R^{34}$ 、シアノ基または複素環基を示す。

$R^{4a}$  が基  $-CO \cdot R^{30}$  である場合、 $R^{30}$  は水素原子またはハロゲン原子（好適には弗素、塩素、臭素または沃素）を示し、より好適には塩素または臭素である。

基  $-CO \cdot X^1 R^{11}$  において、 $X^1$  は酸素原子また

は硫黄原子を示し、 $R^{11}$  は水素原子、アルカリ金属原子、アルカリ土類金属原子、アンモニウム基、有機アミン残基または  $R^6$  で示されるいずれかの基を示す。

$R^{11}$  がアルカリ金属、アルカリ土類金属、3価の金属、アンモニウム基または有機アミン残基であるときは、本発明の化合物は塩を形成している。

好適な塩は、ナトリウム塩、カリウム塩のようなアルカリ金属塩、カルシウム塩、マグネシウム塩のようなアルカリ土類金属塩、鉄塩、アルミニウム塩のような3価の金属塩、アンモニウム塩、トリメチルアミン塩、トリエチルアミン塩、トリプロピルアミン塩、トリブチルアミン塩等の有機アミン塩があげられる。

$R^{11}$  で示される他の好適な基の例は、前記  $R^6$  において示したものと同様である。

$R^{4a}$  が基  $-A-COX^1R^{31}$  を示す場合、 $A$  および  $X^1$  は前記したものと同意義であり、 $R^{31}$  は水素原子または  $C_1-C_6$  アルキル基を示す。

には、オキシラニル基、1,3,4-オキサジアゾール-2-イル基または5-オキソ-1,2,4-オキサジアゾール-3-イル基を示す。

式(I)および式(II)において、 $R^4$  および  $R^{4a}$  は好適には、いずれも3位に結合している。

前記式(II)において、特に好適な化合物は、 $R^{4a}$  が3位に結合しており、そして基  $-COR^{30}$  ,  $-CO.X^1R^{11}$  ,  $-A-COX^1R^{31}$  ,  $-CO.NHR^8$  ,  $-A-CONHR^8$  ,  $-A-X^1R^{33}$  ,  $-A-R^{34}$  , シアノ基または1,3,4-オキサジアゾール-2-イル基 ( $X^1$  は酸素原子または硫黄原子を示し、 $R^{11}$  は水素原子、 $C_1-C_{10}$  アルキル基またはフェニル基を示し、 $R^8$  は水素原子または  $C_1-C_6$  アルキル基を示し、 $A$  は  $C_1-C_4$  アルキレン基またはアルケニレン基を示し、 $R^{30}$  は水素原子を示し、そして  $R^{34}$  は前記したものと同意義である)を示す場合である。

式(I)および式(II)において最も好適な化合物は、 $R^5$  が水素原子を示し、 $R^1$  と  $R^2$  とは同一であつてエチル基またはイソプロピル基を示すか、あ

基  $-CO.NR^7R^8$  および  $-A-CONR^7R^8$  において、 $A$  ,  $R^7$  および  $R^8$  は前記したものと同意義であり、これらの例についても前記したとおりである。

$R^{4a}$  が基  $-A-NHR^{32}$  を示す場合、 $A$  は前記したものと同意義であつて、好適には  $C_1-C_4$  アルキレン基であり、 $R^{32}$  はフェニル基または  $C_1-C_6$  アルキルもしくは ( $C_1-C_6$  アルキル)カルバモイル置換分を有するフェニル基を示す。

$R^{4a}$  が基  $-A-X^1R^{33}$  を示す場合、 $X^1$  および  $A$  は前記したものと同意義であつて、 $A$  は好適には  $C_1-C_4$  アルキレン基であり、 $R^{33}$  は水素原子、 $C_1-C_6$  アルカノイル基、 $C_1-C_6$  ハロアルカノイル基、ベンゾイル基または  $C_1-C_6$  アルキル基を示す。

$R^{4a}$  が基  $-A-R^{34}$  を示す場合、 $A$  は前記したものと同意義であつて、好適には  $C_1-C_4$  アルキレン基であり、 $R^{34}$  はハロゲン原子、シアノ基または  $C_1-C_6$  アルカノイル基を示す。

$R^{4a}$  が複素環基を示す場合、このものは好適

るいは  $R^1$  がエチル基を示し、 $R^2$  が *sec*-ブチル基を示す場合であつて、そして  $R^{4a}$  が上記の特に好適な基を示す場合である。

本発明の化合物を以下に例示する。各化合物に付された番号は、その後の記載においてそのまま参照される。



№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
19	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	3-OOOH	
20	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	CH <sub>3</sub>	3-OH <sub>3</sub>	"	208-207
21	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	4-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	201-202
22	"	"	4-O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	188-189
23	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	152-153
24	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	257-258
25	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	4-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	252-253
26	"	"	4-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	297.5-298.5
27	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	202-203
28	CH <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	"	"	198-200
29	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	3-O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	198-140
30	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	248-249
31	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	H	3-OOSH	
32	"	"	"	3-OONa	> 345
33	"	"	"	3-OONH <sub>4</sub>	155-157
34	"	"	"	3-OONH(O <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>3</sub>	115-119
35	"	"	"	2-OONH	98-100
36	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	"	3-OONH	132-133

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
1	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	2-OOOH	194-195
2	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	187-188
3	CH <sub>3</sub>	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-OOOH	179-180
4	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	214-215
5	"	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	200-201
6	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	224-225
7	"	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	271-272
8	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	228-230
9	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	210-211
10	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	211-212
11	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	274-275
12	CH <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	"	"	187-188
13	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	"	245-246
14	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	"	135-136
15	nO <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	"	
16	"	nO <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	
17	secO <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	secO <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	
18	"	CH <sub>3</sub> -O-CH-CH <sub>3</sub>	"	"	

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
55	CH <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	3-CH <sub>3</sub>	3-OOCCH <sub>3</sub>	116—117
56	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	132—135
57	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	2-OOCCH <sub>3</sub>	92.5—93.5
58	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	134—135
59	CH <sub>3</sub>	"	"	3-OOCCH <sub>3</sub>	40—45
60	"	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	132—133
61	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	95—96.5
62	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	112—114
63	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	115—118
64	"	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	"	"	101—102
65	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	173—173.5
66	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	4-Br	"	154—155
67	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CH <sub>3</sub>	"	n <sub>D</sub> <sup>22</sup> 1.5746
68	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	4-O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	111—112
69	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	181—182
70	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	4-CH <sub>3</sub>	"	185—186
71	"	"	4-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	184—185
72	CH <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	144—145

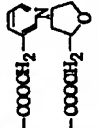
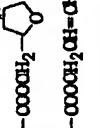






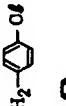


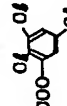
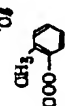
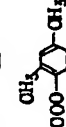
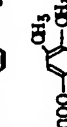
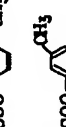
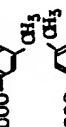
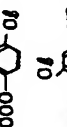
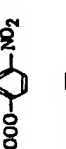

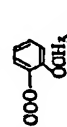
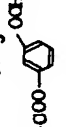
  

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
37	CH <sub>3</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	3-OOCCH <sub>3</sub>	108—109
38	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	133—135
39	"	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	139—140
40	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	114—115
41	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	117—120
42	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	145—148
43	"	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	"	"	n <sub>D</sub> <sup>25</sup> 1.8003
44	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	148—150
45	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	4-Br	"	155—157
46	"	"	4-CH <sub>3</sub>	"	147—148
47	"	"	4-CH <sub>3</sub>	"	150—153
48	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	4-CH <sub>3</sub>	"	162—163
49	"	"	4-O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	152—153
50	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	126—127
51	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	146—148
52	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	4-CH <sub>3</sub>	"	178—179
53	"	"	4-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	214—215
54	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	102—103











№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
91	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-COOCH <sub>3</sub>	155-156
92	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	3-COOCH <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	86-87
93	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	133-135
94	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	2-COOi-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	101-102
95	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	122-125
96	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> COCH <sub>3</sub>	110-111
97	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	52-54
98	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CN	176-178
99	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	78-79
100	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	65-67
101	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	62-64
102	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	58.6
103	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>7</sub>	53.7
104	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>9</sub>	63.0
105	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>11</sub>	58.2
106	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>13</sub>	60.6
107	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>15</sub>	67.6
108	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>17</sub>	72.1

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
73	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-COOCH <sub>3</sub>	155-156
74	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-COOCH <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	86-87
75	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	133-135
76	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	2-COOi-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	101-102
77	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	122-125
78	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> COCH <sub>3</sub>	110-111
79	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	52-54
80	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CN	176-178
81	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	78-79
82	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	65-67
83	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	62-64
84	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	58.6
85	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>7</sub>	53.7
86	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>9</sub>	63.0
87	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>11</sub>	58.2
88	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>13</sub>	60.6
89	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>15</sub>	67.6
90	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> H <sub>17</sub>	72.1

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
109	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-OOSCH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	128-130
110	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	95-97
111	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	120-121
112	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> - 	53.3
113	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> - 	102.5
114	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	122-125
115	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> O≡CH	150-153
116	"	"	"	3-COO- 	126-128
117	"	"	"	3-COO- 	77-78
118	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> - 	163-164
119	"	"	"	3-COOCH <sub>2</sub> - 	172-174
120	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> - 	n <sub>D</sub> <sup>25</sup> 1.5805
121	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-OOSCH <sub>2</sub> - 	129-131
122	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-OOSCH <sub>2</sub> - 	177-179
123	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-COO- 	175-177
124	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-COO- 	148-150
125	"	"	"	3-COO- 	212-213
126	"	"	"	3-COO- 	144-146
127	"	"	"	3-COO- 	158-160
128	"	"	"	3-COO- 	149-151
129	"	"	"	3-COO- 	150-152
130	"	"	"	3-COO- 	175-178
131	"	"	"	3-COO- 	232-235
132	"	"	"	3-COO- 	154-155
133	"	"	"	3-COO- 	134.1
134	"	"	"	3-COO- 	123-124
135	"	"	"	3-COO- 	201-203
















№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
136	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-OOC-  -OOCH <sub>3</sub>	202-204
137	"	"	"	3-OOC-  -COONH <sub>4</sub>	127-132.5
138	"	"	"	3-OOC-  -N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	129-130
139	"	"	"	3-OOC-  -NHCOCH <sub>3</sub>	225-228
140	"	"	"	3-OOC-  -ON	209.5-210.5
141	"	"	"	3-OOS- 	158-161
142	"	"	"	3-OOCN(O <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	127-129
143	"	"	"	3-OOC- 	140-142
144	"	"	"	3-OOC- 	178-180
145	"	"	"	3-OOC- 	148-150
146	"	"	"	3-OOC- 	154-155
147	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	2-CONH <sub>2</sub>	175-178

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
148	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	2-CONH <sub>2</sub>	189-190
149	CH <sub>3</sub>	"	"	3-CONH <sub>2</sub>	288-290
150	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	247-248
151	"	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	242-243
152	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	242-244
153	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	"	251-252
154	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	4-O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	181-182
155	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	215-216
156	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	190-191
157	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	4-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	250-252
158	CH <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	209-210
159	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	"	"	195-196
160	CH <sub>3</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CONHCH <sub>3</sub>	202.5-205
161	"	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	241-242
162	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	172-174
163	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	187-188
164	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	190-191
165	"	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	"	"	175-176





$\Delta$	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
184	CH <sub>3</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	189-190
185	"	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	207-209
186	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	129-130
187	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	151-152
188	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	208-210
189	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	245-248
190	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	172-174
191	CH <sub>3</sub>	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	134-135
192	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	144-145
193	CH <sub>3</sub>	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	185-196
194	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	115-116
195	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	183-194
196	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	140-142
197	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	151-153
198	"	"	"	3-CONH(CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH) <sub>2</sub>	165-167
199	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> (CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH) <sub>2</sub>	98-100

$\Delta$	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
166	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CONHCH <sub>3</sub>	217-219
167	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	182-184
168	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	228-229
169	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	4-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	274-275
170	CH <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	196-197
171	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	125-128
172	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	3-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	224-225
173	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	141-142.5
174	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	192-194
175	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	146-147
176	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	168-170
177	CH <sub>3</sub>	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	188.5-191
178	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	"	201-202
179	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	2-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	100.5-101
180	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	133.5-135
181	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	159.5-161
182	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	135-137
183	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	153.5-154.5



№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
212	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	3-CONHCH <sub>2</sub> - 	192.5-193.5
213	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> - 	198-197
214	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CONHCH <sub>2</sub> - 	258-281
215	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> - 	235-236
216	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> - 	51-53
217	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CONH- 	198-197
218	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CONH- 	253-255
219	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CONH- 	269-270
220	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CONH- 	265.5-266.5 (分解)
221	"	"	"	3-CONH- 	328-329
222	"	"	"	3-CONH- 	263.5-266
223	"	"	"	3-CONH- 	255-258
224	"	"	"	3-CONH- 	256-260






№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
200	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	116-119
201	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> O- 	216.5-217.5
202	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> OCH	
203	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> COOCH <sub>3</sub>	210-212
204	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> N(i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub> ) <sub>2</sub>	182-184
205	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	117-120
206	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> N- 	206-207
207	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	189-171
208	"	"	"	3-CON(CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub>	145-147
209	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> O≡CH	196-197
210	"	"	"	3-CONH- 	225-227
211	"	"	"	3-CONH- 	258-259

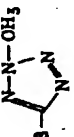


K	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
225	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -CN	300-304
226	"	"	"	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -OCH <sub>3</sub>	212.5-214
227	"	"	"	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -OO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	219-220
228	"	"	"	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -COOCH <sub>3</sub>	265-266
229	"	"	"	3-CONH <sub>2</sub>	93-95
230	CH <sub>3</sub>	"	"	3-CONHCH <sub>3</sub>	190-191
231	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CONHCH <sub>3</sub>	155-156
232	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	165-167
233	"	"	"	3-CONHCOOCH <sub>3</sub>	169-170
234	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -N	183.2
235	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -N	205.3
236	"	"	"	3-CON<CH <sub>3</sub> CHO	137-140

K	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
237	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	3-CON<CH <sub>3</sub> COCH <sub>2</sub> COCH <sub>3</sub>	96-97
238	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	134-135
239	"	"	"	3-CONHCOOCH <sub>3</sub>	186-187
240	"	"	"	3-CONHCH <sub>3</sub>	193-194
241	"	"	"	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -OCH <sub>3</sub>	231-233
242	"	"	"	3-CON<CH <sub>3</sub> NH <sub>2</sub>	105-108
243	"	"	"	3-CONH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	189-191
244	"	"	"	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	180-182
245	"	"	"	3-CONH-N-C <sub>6</sub> H <sub>11</sub>	249-251 (分解)
246	"	"	"	3-CONH-N-C <sub>6</sub> H <sub>11</sub>	222-224
247	"	"	"	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -N	280-282
248	"	"	"	3-CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -N	216-219

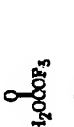


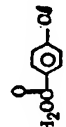
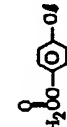

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
261	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	3-ON	121-122.5
262	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	4-i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	127-128
263	CH <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	132-134
264	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	226.5-227.5
265	"	"	"	3-COO- 	153.7
266	"	"	"	3-COO 1 / 3 A6	>300
267	"	"	"	3-COO 1 / 3 F6	>200 で紫色を伴う分解がはじまる
268	"	"	"	3-CONNH <sub>2</sub>	168-169
269	"	"	"	3- 	203-204
270	"	"	"	3-COOH(O <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	"
271	"	"	"	3-COO 1 / 2 Oa	"
272	"	"	"	3-CONNHOOCH <sub>3</sub>	165-166

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
249	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CONH- 	237
250	"	"	"	3-CONH- 	171.5
251	"	"	"	3-CONH- 	291.5-292.5
252	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CON- 	190-191
253	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CON- 	230-232
254	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	"	3-ON	153-154
255	"	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	97-99
256	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	150-151.5
257	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	115-116
258	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	162-163
259	n-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	"	122-123.5
260	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	4-O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	178-179

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
273	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H		196-197
274	"	"	"	3-CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	195-197
275	CH <sub>3</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CH <sub>2</sub> OH	ガラス状固体
276	"	t-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	152-153
277	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	102-103
278	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	139-141
279	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	ガラス状固体
280	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	187-189
281	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		"	"	
282	-CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	"	"	"	
283	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"		97-98
284	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	166-167

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
285	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H		223-224
286	"	"	"		158-159
287	"	"	"		180-181
288	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"		106-107
289	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"		149-150
290	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> OSO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	136-137
291	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	85-88
292	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	128-129
293	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> OO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	122-123
294	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> OO <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	141-142
295	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> On-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	117-118
296	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		"	"	

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
309	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CH <sub>2</sub> NHCO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	140—142
310	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CN	112—113
311	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NHCH <sub>2</sub> CH(OCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	111—112
312	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NH(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> Ph	148—149
313	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NH(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> Ph	204—208
314	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NH(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> Ph	135—137
315	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NHCOO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	121—123
316	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NHCOO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	167—168
317	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NHCO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	150—152
318	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CH <sub>2</sub> NHCO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	135—136
319	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CH <sub>2</sub> N(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> Ph	216—218
320	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> N(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> Ph	221—223

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
297	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	3-CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	101—102
298	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> NHCO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	127—128
299	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Ph	104—105
300	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> O-Ph	126—127
301	CH <sub>3</sub>	"	"	3-CH <sub>2</sub> Br	124—125
302	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CH <sub>2</sub> Cl	107
303	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> Br	132—133
304	"	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	146—147
305	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	175—176
306	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CH <sub>2</sub> Cl	175—176
307	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> Br	201—202
308	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> NH <sub>2</sub>	134—137.5

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
321	CH <sub>3</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	3-CHO	88-90
322	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	"	ガラス状固体
323	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	158.5-159.5
324	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CH}-\text{CH}=\text{CH}_2 \end{array}$	"	"	
325	"	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-CH=N-OH	174-175
326	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	232-234
327	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\ \diagup \\ \text{3-CH} \\ \diagdown \\ \text{OCH}_3 \end{array}$	154-157
328	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{3-CH} \quad \text{O} \end{array}$	189.5-190.5
329	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> COOH	231-233
330	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOH	183-185
331	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> COOCH <sub>3</sub>	
332	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	160-162

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
333	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-CH}_2\text{OSO}_2\text{H}_5 \end{array}$	
334	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> H <sub>7</sub>	
335	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> -O <sub>2</sub> H <sub>9</sub>	
336	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> -O <sub>2</sub> H <sub>15</sub>	
337	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOCH <sub>3</sub>	
338	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	133-134.5
339	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CH}-\text{CH}=\text{CH}_2 \end{array}$	"	"	
340	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-CH}_2\text{CH}_2\text{OSO}_2\text{H}_5 \end{array}$	
341	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> -O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	
342	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> -O <sub>2</sub> H <sub>9</sub>	
343	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOCH <sub>2</sub> -O <sub>2</sub> H <sub>15</sub>	
344	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	"	3-CH <sub>2</sub> CN	



$\Delta$	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
345	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	3-CH <sub>2</sub> CN	153—154
346	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	206—208
347	-CH <sub>2</sub> CH=CH-	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ \text{CH}-\text{CH}=\text{CH}_2 \end{array}$	"	"	
348	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-CH <sub>2</sub> COOH <sub>2</sub>	212—213.5
349	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOH <sub>2</sub>	
350	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\   \\ \text{3-CH}_2\text{CH} < \begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\   \end{array} \end{array}$	146—149
351	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{OH} \\   \\ \text{3-CH}-\text{CH}_3 \end{array}$	168—167
352	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{OH} \\   \\ \text{3-CHCH}_2\text{CH}_3 \end{array}$	97—98
353	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{OH} \\   \\ \text{3-CHCH}_2\text{COCH}_3 \end{array}$	154.5—158.5
354	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{OH} \\   \\ \text{3-CHCH}_2\text{NO}_2 \end{array}$	172—176
355	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-OCH}_3 \end{array}$	149—149.5
356	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3 \end{array}$	124—125

$\Delta$	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
357	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-OF}_3 \end{array}$	
358	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-OCH} < \begin{array}{c} \text{OCH}_2\text{H}_5 \\   \end{array} \end{array}$	114—122.5
359	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-O} < \begin{array}{c} \text{OCH}_2\text{H}_5 \\   \end{array} \end{array}$	106.5—107.5
360	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-CH-CH}_2 \end{array}$	60—61
361	"	"	"	3-CH=CH-CH <sub>3</sub>	166—168
362	"	"	"	3-CH=CH-CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	159—162
363	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-CH-CH-OCH}_3 \end{array}$	197—198.5
364	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	3-CH=CH-COOH	
365	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	255.5—256.5
366	"	"	"	3-CH=CH-COOO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	131.5—132.5
367	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ \text{3-CH-O-COOH} \end{array}$	259—260
368	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-CH-CH}_2 \end{array}$	84—88

№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
368	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	$\begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\   \\ \text{3-CH}_2\text{P} < \text{OCH}_3 \\   \\ \text{OCH}_3 \end{array}$	133-134
370	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{CO}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{3-CH}_2\text{SP} < \text{CO}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{CO}_2\text{H}_5 \end{array}$	80-82
371	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> SH	
372	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> SO <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	154-155
373	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> SOCH <sub>2</sub> -CH=CH <sub>2</sub>	142-143
374	"	"	"	3-CH <sub>2</sub> SOCH <sub>2</sub> ·O=CH	124-127
375	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{NH}_2 \\   \\ \text{3-O-N-OH} \end{array}$	233-234
376	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{NH}_2 \\   \\ \text{3-O-N-O-CO}_2\text{H}_5 \end{array}$	111-112
377	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-NO <sub>2</sub>	133-134
378	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	173-174
379	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	188-189
380	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	3-NH <sub>2</sub>	176-177

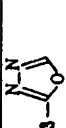
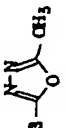
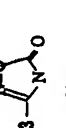
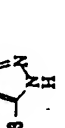
№	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	mp, °C
381	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	3-NH <sub>2</sub>	196-197
382	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	286-287
383	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-NHCOCH}_3 \end{array}$	65-66
384	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	83-85
385	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	237-238
386	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"	$\begin{array}{c} \text{O} \\    \\ \text{3-NHCOCH}_2\text{OCH}_3 \end{array}$	121-122
387	"	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	"	m <sub>D</sub> <sup>25</sup> 1.5837
388	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	3-N(COOCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	234-235
389	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	$\begin{array}{c} \text{N} \\   \\ \text{3-} \text{---} \text{O} \end{array}$	62-63
390	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	i-O <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	190-191
391	"	"	"	$\begin{array}{c} \text{N} \\   \\ \text{3-} \text{---} \text{O} \end{array}$	158-161
392	O <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	sec-O <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	"	$\begin{array}{c} \text{N} \\   \\ \text{3-} \text{---} \text{O} \end{array}$	

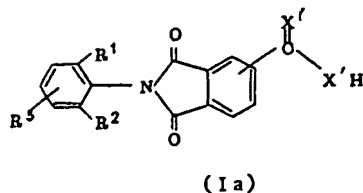
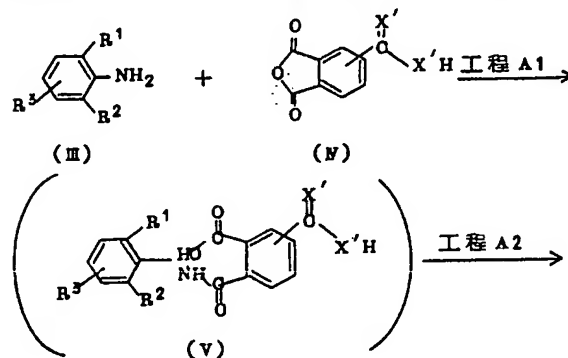
上記の化合物中、好適なものは、化合物 9, 11, 65, 75, 77, 78, 81, 82, 83, 84, 85, 86, 153, 278, 279, 280, 295, 323, 329, 332, 338, 348, 385 および 393 である。

本願発明の化合物は、以下に記載される方法のいずれかによつて製造することができる。

#### 製法 A

$R^4$  がカルボキシ基、チオカルボキシ基（好ましくはメルカプトカルボニル基）またはニトロ基である本発明化合物、即ち、式 (Ia) を有する化合物およびそのニトロ誘導体は、次の反応式に示した方法により製造することができる。

	$R^4$	$R^3$	$R^2$	$R^1$	例	mp, °C
		H	$1-O_3H_7$	$1-O_3H_7$	393	141-142
		,	,	,	394	213-214
		,	,	,	395	220-221
		,	,	,	396	145-146



式中、 $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  および  $X'$  は前記と同意義を示す。

工程 A1 は無水フタル酸の誘導体である化合物 (IV) とアニリンの誘導体である化合物 (III) を反応させる工程であり、溶媒の存在または非存在下に実施することができる。溶媒を用いる際には、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくはトルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドのような非プロトン性極性溶媒類、メチルブチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノンのようなケトン類、ブタノールおよび酢酸を挙げることができる。

反応は、加熱することが望ましいが、通常は

反応中に水が副生するので、水と共沸し、かつ不活性な溶媒を使用し、反応を、この共沸体の沸点で実施するのが好適である。

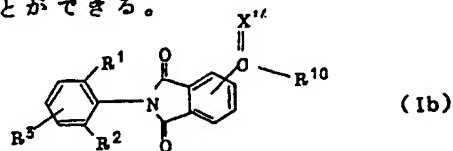
通常および好適には、工程 A1 の終了後、化合物 (V) を中間体として単離することなく、工程 A1 と同様の反応条件下に工程 A2 を実施する。

しかし、目的によつては、中間体 (V) を単離することも可能であり、通常定量的に得ることができる。例えば、 $X'$  が酸素原子を示すカルボキシ基が 3 位に置換している化合物 (IV) と 2,6-ジエチルアニリンまたは 2,6-ジイソプロピルアニリンとの反応においては、融点 243.5 ~ 244℃ または融点 191 ~ 193℃ を有する対応する中間体 (V) をそれぞれ得ることができる。

また、化合物 (IV) の無水フタル酸誘導体を使用する代りに、化合物 (IV) に対応するフタル酸自体または酸ハライド類（たとえばクロリドもしくはブロミド）、活性アミド、活性エステル（たとえば *p*-ニトロベンジルエステル）のような活性誘導体を用いることもできる。

## 製法 B

化合物 (I) において  $R^4$  が  $-OX''$ ,  $R^{10}$  基を示す化合物 (Ib) は、ハロゲン化試薬と相当する化合物 (Ia) を反応させることによつて製造することができる。



(式中、 $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^{10}$  および  $X''$  は前記と同意義を示す。)

ハロゲン化試薬は特に制限はなく、一般にカルボン酸から酸ハライドを製造できる試薬であれば使用できるが、好適には塩化チオニルまたは臭化チオニルが用いられる。

反応は常法に従つて実施されるが、溶媒の存在下反応を行うのが好ましい。溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくは、ヘキサン、ヘプタンのような脂肪族炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレンのよう芳香族炭化水素類またはシクロヘキサンの

式中、 $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$ ,  $R^{10}$  および  $X''$  は前記と同意義を示す。

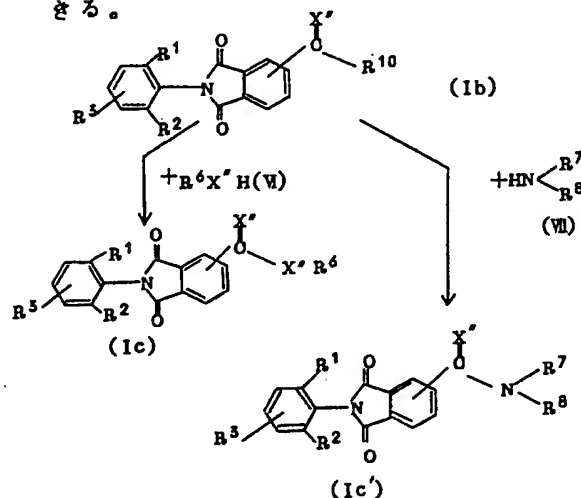
化合物 (Ic) および化合物 (Ic') は、化合物 (Ib) を化合物 (V) または (VI) と反応させることにより、それぞれ得ることができる。2つの反応は、同様の反応条件下で実施されるので、以下一緒に記載することにする。

反応は好ましくは脱酸剤の存在下に行われ、好適には溶媒も用いる。脱酸剤は反応により生成する酸を反応液中より除くためのもので通常塩基を用いる。好ましくはトリエチルアミン、トリブチルアミンのようなトリ直鎖アルキルアミン類、1,5-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン-5のような三級シクロアルキルアミン類、ピリジン、または炭酸ナトリウム、炭酸カリウムのようなアルカリ金属炭酸塩類である。溶媒は、反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくはベンゼン、トルエンのよう芳香族炭化水素類、クロロホルム、塩化メチレンのようハロゲン化炭化水素類、ジイ

ような脂肪族炭化水素類が用いられる。反応温度も特に限定はなく広い温度範囲で実施しうるが、好ましくは、加熱還流によつて反応が行われる。

## 製法 O

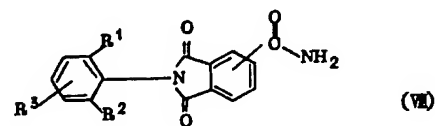
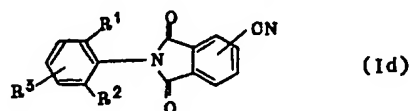
化合物 (Ia) のカルボン酸またはチオカルボン酸のエステルおよびアミド誘導体である化合物 (Ic) および (Ic') は、相当する酸ハライド (Ib) から、下記の反応式に従つて製造することができる。



ソプロピルエーテル、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンのようなエーテル類、アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル類、アセトンのようなケトン類または上記の溶媒を2以上混合したものを用いる。

## 製法 D

化合物 (I) において  $R^4$  がシアノ基である化合物 (Id) は、化合物 (IV) を常法に従つて脱水することによつて製造できる。



(式中、 $R^1$ ,  $R^2$  および  $R^3$  は前記と同意義を示す。) 脱水剤は特に限定はなく、一般に酸アミドを相当するニトリルに変換できる試薬であり、この分子の他の部分に影響を与えないもの

であればよく、好適には五塩化リン、塩化チオニルまたはオキシ塩化リンが用いられ、さらに好適には、オキシ塩化リンである。

反応には溶媒を使用するのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくはヘキサン、ヘプタンのような脂肪族炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類、シクロヘキサンのような脂環式炭化水素類またはクロロホルム、塩化メチレンのようなハロゲン化炭化水素類を用いる。反応温度は広い範囲で選択できるが、通常加熱還流下反応を行うのが好ましい。

製法Dの出発原料である化合物(Ⅳ)は、化合物(Ic')において $R^7$ および $R^8$ が水素原子で、 $X^*$ が酸素原子である化合物であるが、この化合物は製法Cで記載した方法に従って製造することができる。

#### 製法E

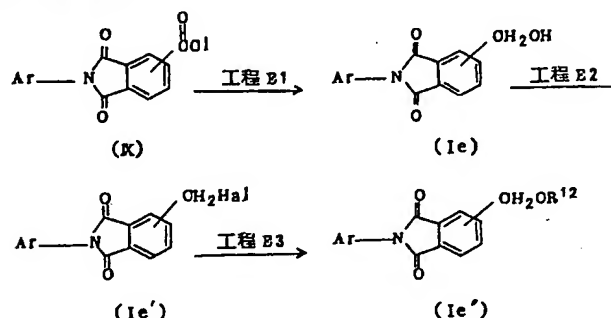
化合物(I)において $R^4$ がヒドロキシメチル基、ヘロメチル基、アルコキシメチル基、シク

ロアルキル基、アリアル基、アルケニル基、アルキニル基、置換されていてもよいアルキル基を示す。

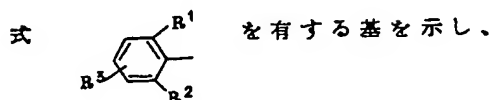
化合物(Ib)において、 $X^*$ が酸素原子を示し、 $R^{10}$ が塩素原子を示す化合物(K)はこの反応の出発原料であるが、所望により製法Bに記載した方法により製造することができる。

工程E1は、化合物(K)のクロロホルミル基を還元しヒドロキシメチル基にする工程である。還元剤は一般にクロロホルミル基の還元に使用できるものであればよく、好適には水素化リチウムアルミニウム、リチウムボロヒドリド、ビス(2-メトキシエトキシ)アルミニウムナトリウムヒドリド、ナトリウムボロヒドリドのような水素化錯金属類を使用する。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、ジグリムのようなエーテル類、ベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類である。反応温度は特

ロアルコキシメチル基、アリアルオキシメチル基、アルケニルオキシメチル基またはアルキニルオキシメチル基を示す化合物(Ie)、(Ie')および(Ie')は下記の反応式に従って製造することができる。



上式中、Arは



Halは 弗素原子、塩素原子、臭素原子、炭素原子のようなハロゲン原子を示し、好適には塩素原子または臭素原子であり、 $R^{12}$ は、前記 $R^5$

に限定はないが通常副反応がおこらないように、高温をさけて反応を実施する。好適には氷冷下ないし室温にて反応を行う。所望により、合成した化合物(Ie)を工程E2において、相当するヘロメチル誘導体(Ie')に変換することができる。この工程は、化合物(Ie)を、例えば塩化チオニル、臭化チオニル、三臭化リンのようなハロゲン化試薬と反応させることにより達成できる。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくは、ヘキサン、ヘプタンのような脂肪族炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類、シクロヘキサンのような脂環式炭化水素類またはジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンのようなエーテル類である。反応温度は特に限定はなく広い範囲の温度を選択できるが、好適には室温または反応混合物の沸点で反応が行われる。

所望により、合成した化合物(Ie')は相当する

シクロアルコキシメチル、アリーロキシメチル、アルケニルオキシメチル、アルキニルオキシメチル、アルコキシメチルまたは置換されたアルコキシメチル誘導体 (Ie') に変換することができる。これは、化合物 (Ie') を式  $R^{12}OH$  を有する化合物 (式中、 $R^{12}$  は前記と同意義を示す。) と反応させることにより達成されるが、好適には、相当する金属アルコキシド、さらに好適にはナトリウムアルコキシドのようなアルカリ金属アルコキシドを用い、通常加熱することによって実施される。反応は溶媒中で行うのが好ましく、 $R^{12}OH$  が特に低級アルコールである場合には好適には、過剰の  $R^{12}OH$  を溶媒として使用する。

#### 製法 F

化合物 (Ie) は、酸の好適な反応性誘導体、例えば酸無水物、酸混合無水物、活性エステルまたは酸ハライドと反応させることにより相当するエステルに変換される。好ましくは酸ハライドを用い、さらに好適には酸クロリドまたは酸

冷下～反応混合物の沸点で行われる。

#### 製法 G

化合物 (I) において、 $R^4$  がジ ( $O_1 - O_3$  アルコキシ) ホスホリルチオ基で置換されたメチル基を示す化合物は、化合物 (Ie') を式  $M-S-R^{9a}$  を有する金属化合物と反応させることにより製造することができる。式中、 $M$  は、アルカリ金属を示し、好適にはナトリウムまたはカリウムであり、 $R^{9a}$  は、前記  $R^9$  で定義したジアルコキシホスホリル基を示す。

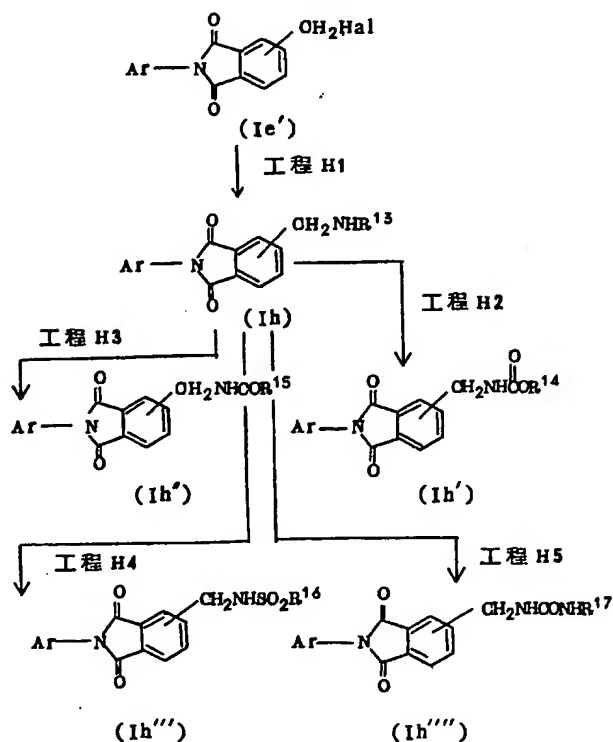
反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはテトラヒドロフラン、ジオキサンのようなエーテル類、アセトニトリルのようなニトリル類またはアセトンのようなケトン類である。反応温度は特に限定はないが、通常室温で実施される。

#### 製法 H

化合物 (I) において  $R^4$  がアミノメチル基または種々置換されたアミノメチル基を示す化合物

ブロミドを使用する。酸ハライドを使用した場合、反応中に生成するハロゲン化水素を除去するために、好ましくは脱酸剤を使用する。脱酸剤は特に限定はないが、好適にはトリエチルアミン、トリブチルアミン、1,5-ジアザビシクロ [5.4.0] ウンデセン-5 のような三級アミン類、ピリジン、または炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウムのようなアルカリ金属炭酸塩類またはアルカリ酸性炭酸塩類が用いられる。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はなく、好適にはベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類、クロホルム、塩化メチレンのようなハロゲン化炭化水素類、ジイソプロピルエーテル、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンのようなエーテル類、アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル類、またはアセトンのようなケトン類が用いられる。反応は広い温度範囲で実施することができるが、好適には氷

(Ib), (Ib'), (Ih'), (Ih''') または (Ih''') は、下記の反応式に従って製造することができる。



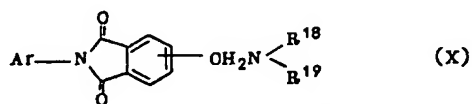
上記式中、Arは前記と同意義を示し、 $R^{13}$ は窒素原子または前記 $R^5$ で定義した種々のアルキル基、置換アルキル基、シクロアルキル基若しくはアリール基を示し、 $R^{14}$ は窒素原子またはエステルアルコール残基を示し、 $R^{15}$ はカルボニル基に結合する基で、 $-OOR^{15}$ 基と表現した場合に前記 $R^9$ で定義したカルボン酸アシル基を示す基であり、 $R^{16}$ はスルホン基に結合する基で、 $-SO_2R^{16}$ 基と表現した場合に前記 $R^9$ で定義したスルホン酸アシル基を示す基であり、 $R^{17}$ は前記 $R^7$ または $R^8$ で定義した基または原子を示すものである。

工程H1はハロメチル化合物(Ie')を式 $R^{13}NH_2$ を有する一級アミン類と、脱酸剤の存在下に反応させる工程である。脱酸剤は製法Fにおいて記載したものが使用される。化合物(Ie')と一級アミンの当量関係は特に限定はないが、好適には一級アミンと化合物(Ie')の当量比は1:1~3:1の範囲で選択される。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないも

塩基好ましくはピリジンを触媒量添加し、通常室温にて実施する。溶媒は製法Fに記載したものを使用する。

#### 製法J

化合物(X)は



(式中、Arは前記と同意義を示し、 $R^{18}$ および $R^{19}$ は窒素原子と一緒になつて窒素原子を含有する複素環式基を示し、そのような基としては、 $R^4$ の定義において置換されたアルキル基の項の置換分として記載された複素環式基を示す。) 製法EおよびHにおいて定義された化合物(Ie')を式 $HNR^{18}R^{19}$ を有する複素環式基(式中、 $R^{18}$ および $R^{19}$ は前記と同意義を示す。)と反応させることによつて製造することができる。反応は脱酸剤の存在下溶媒中で実施するのが好ましく、そのような脱酸剤としては製法Fに記載したものを使用できるが、好適にはアル

のであれば特に限定はないが、好適にはベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類、ハロゲン化炭化水素類好ましくはクロロホルム、塩化メチレンのような脂肪族ハロゲン化炭化水素類またはテトラヒドロフラン、ジオキサンのようなエーテル類である。反応は、広い温度範囲で実施することができるが、好適には室温~80℃で反応を行う。

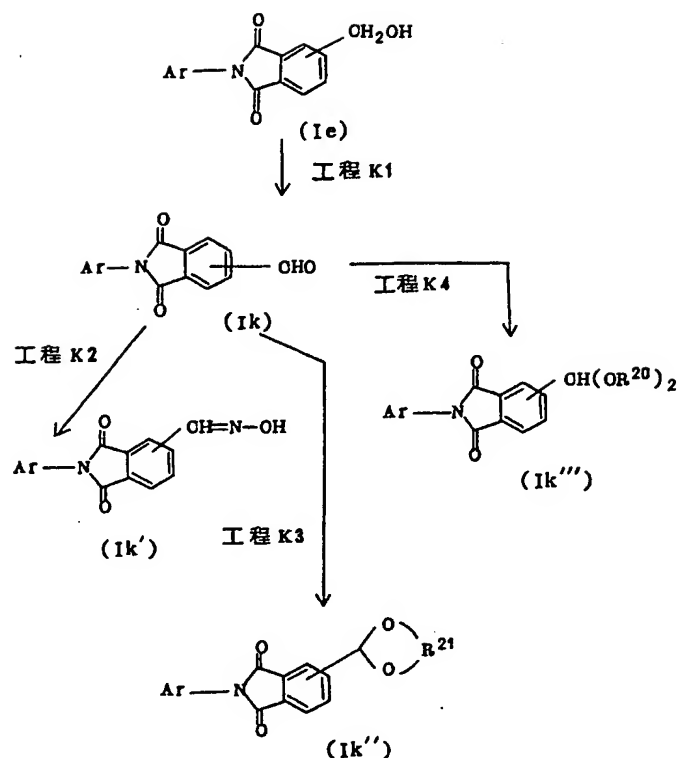
工程H2、H3およびH4は、工程H1により合成された化合物(Ih)と式 $Hal.OOOR^{14}$ を有する化合物、式 $R^{15}OOHal$ を有する化合物または式 $R^{16}SO_2Hal$ を有する化合物とをそれぞれ反応させる工程である。反応は、脱酸剤を使用し溶媒中で、室温または加熱下を実施するのが好ましい。溶媒および脱酸剤は製法Fに記載したものを使用し、反応温度は室温~50℃で行うのが好ましい。

工程H5は、化合物(Ih)を式 $R^{17}NOO$ を有する適当なイソシアナート類と反応させ、化合物(Ih''')を製造する工程である。反応は溶媒中で、

カリ金属炭酸塩類を用いる。溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくはジオキサンのようなエーテル類またはアセトニトリルのようなニトリル類である。反応は室温または加熱下を実施するのが好ましい。

#### 製法K

化合物(I)において、 $R^4$ がホルミル基、ヒドロキシイミノメチル基、環状アセタール基またはアルコキシ、アルケニルオキシ若しくはアルキニルオキシが置換したメチル基を示す化合物(Ik)、(Ik'), (Ik'')および(Ik''')は下記の反応式に従つて製造することができる。



上記式中、Ar は前記と同意義を示し、R<sup>20</sup> は、R<sup>5</sup> で定義されたアルキル基、アルケニル基また

限定はないが、好ましくはメタノール、エタノールのようなアルコール類である。反応は通常室温または加熱下を実施される。

工程 K3 は、化合物 (Ik) を、分岐していてもよいアルキレングリコールと、好ましくは p-トルエンスルホン酸の触媒量存在下に反応させる工程である。反応は好適には溶媒中で行うが、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はなく、好ましくはベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類である。反応は通常加熱下を実施される。

工程 K4 は、化合物 (Ik) を式 OH(OR<sup>20</sup>)<sub>3</sub> を有する化合物と反応させる工程であり、好適には化合物 OH(OR<sup>20</sup>)<sub>3</sub> を過剰量使用する。反応は触媒量の p-トルエンスルホン酸の存在下、室温で実施するのが好ましい。反応は溶媒中で行うのが好適であるが、好ましくは反応溶媒として化合物 OH(OR<sup>20</sup>)<sub>3</sub> を過剰量使用する。

#### 製法 L

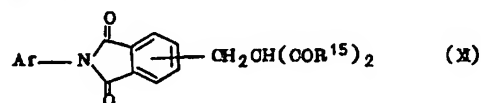
化合物 (I) において R<sup>4</sup> が 2 個のカルボン酸ア

はアルキニル基を示し、R<sup>21</sup> は式  $\begin{smallmatrix} \text{O}^- \\ | \\ \text{C} \\ | \\ \text{O}^- \end{smallmatrix}$  と一緒になつて R<sup>4</sup> で定義された複素環式基を示すもので、R<sup>21</sup> 自体は好ましくは分岐していてもよいアルキレン基を示す。

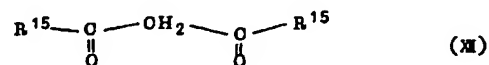
工程 K1 は、製法 B により製造された化合物 (Ie) を酸化剤と反応させて相当するホルミル誘導体 (Ik) を製造する工程である。酸化剤は一般にヒドロキシメチル基をホルミル基に変換できるものであれば特に限定はないが、好ましくは二酸化マンガンの無水クロム酸であり、化合物 (Ie) に対して 1 ~ 8 当量使用するのが好適である。反応は溶媒中で行うことが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適には酢酸のような低級脂肪酸類またはクロロホルム、四塩化炭素、塩化メチレンのようなハロゲン化炭化水素類である。反応は通常室温または加熱下を実施される。

工程 K2 は、上記合成した (Ik) を適当な溶媒中でヒドロキシルアミンと反応させる工程である。溶媒は反応を阻害しないものであれば特に

シル置換分を有する基を示す化合物 (X) は



(式中、Ar は前記と同意義を示し、R<sup>15</sup> は製法 H の説明中に定義されたものと同意義を示す。)、製法 B で定義された化合物 (Ie') と化合物 (X) とを反応させることによつて製造することができる。

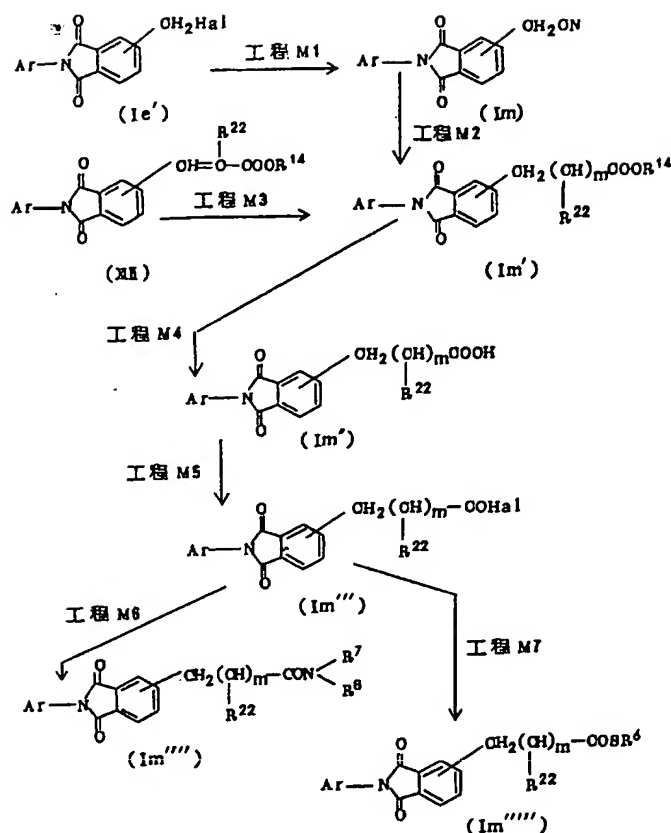


(式中、R<sup>15</sup> は前記と同意義を示す。) 反応は、Organic synthesis 42, 75 (1962) に記載の方法に従つて、アセトン溶媒中、炭酸カリウムの存在下に加熱することによつて実施される。

#### 製法 M

化合物 (I) において R<sup>4</sup> が種々置換されたアルキル基を示す化合物 (Im), (Im') および (Im'') は下記の反応式に従つて製造することができる。





す相当する酸またはエステル化合物 (Im') に変換することができる。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくはメタノール、エタノールのようなアルコール類である。アルコール類を溶媒として使用する場合には相当するエステルを得ることができる。反応は通常加熱下を実施される。

また、 $m$  が 1 を示す化合物 (Im') は、相当する化合物 (XIII) を水添好ましくは接触還元することにより製造することができる。化合物 (XIII) は後記の製法 P に基づいて合成することができる。水添反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはメタノール、プロパノールのようなアルコール類、テトラヒドロフラン、または酢酸のような低級脂肪酸類である。水添反応は好適には水を導入しながら金属触媒、例えばパラジウム炭素またはパラジウム-硫酸バリウムを使用して実施される。

上記式中、 $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$ , Ar および Hal は前と同意義を示し、 $R^{14}$  は製法 H で定義したものと同意義を示し、 $R^{22}$  は、水素原子または  $O_1-O_4$  アルキル基を示し、 $m$  は 0 または 1 を示す。

工程 M1 は、製法 E において合成された化合物 (Ie') をシアン化物好ましくはシアン化アルカリ金属 (例えばシアン化ナトリウムまたはシアン化カリウム) と反応させて、化合物 (Im) を製造する工程である。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はなく、好適にはエタノール、テトラヒドロフルフルアルコールのようなアルコール類、エチレングリコールのようなグリコール類、エチレングリコールモノメチルエーテルのようなグリコールエーテル類、ジメチルホルムアミドのようなアミド類またはジメチルスルホキシドである。反応は通常室温または加熱下を実施される。

所望により、化合物 (Im) は、硫酸のような強酸の存在下に加熱することによって  $m$  が 0 を示

所望により、化合物 (Im') において  $R^{14}$  がエステルのアルコール残基を示す化合物は、工程 M4 において相当するカルボン酸に変換することができる。好適には化合物 (Im') を溶媒中で酸を使用することにより達成される。好ましくは、溶媒はジオキサンのようなエーテル類、酸は硫酸または塩酸のような強酸を使用する。反応は通常室温または加熱下を実施される。

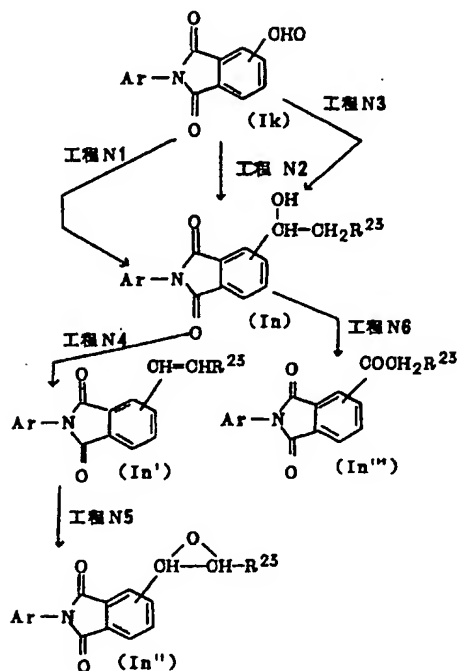
工程 M5 は、化合物 (Im'') を相当する酸ハライドに変換する工程であり、製法 B に記載の方法に従い同様の反応条件にて実施される。

工程 M6 および M7 は、酸ハライド (Im''') を式  $HNR^7R^8$  を有する化合物と反応させることにより相当する化合物 (Im'') を製造し、または式  $R^6SH$  を有する化合物と反応させることにより相当するチオ化合物 (Im''') を製造する工程であり、製法 O に記載した反応条件に従って同様に実施することができる。

#### 製法 N

化合物 (I) において  $R^4$  が種々の置換されたアル

キル基、アルケニル基またはカルボン酸のアシル基を示す化合物は下記の反応式に従つて製造することができる。



$OR^{23}$  を有するアルデヒド類またはケトン類と反応させることにより、工程 N3 において製造することができる。反応は通常、溶媒中で水酸化ナトリウムのような塩基の存在下に室温で実施される。溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはメタノール、エタノールのようなアルコール類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフランのようなエーテル類、ベンゼン、トルエン、ヘキサン、ヘプタンのような炭化水素類またはアセトンのようなケトン類であり、さらに好適にはアセトンと水の混合溶媒である。

所望により、合成したヒドロキシ化合物 (In) を、相当するアルケニル化合物 (In') に工程 N4 において変換することができる。この工程は化合物 (In) を  $\beta$ -トルエンスルホン酸のような適当な脱水剤と反応させる工程である。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類であ

上記式中、Ar は前記と同意義を示し、 $R^{23}$  は水素原子、 $O_1-O_4$  アルキル基、ニトロ基または脂肪族アシル基を示す。

工程 N1 は、前記製法 K において合成された化合物 (Ik) を式  $R^{23}OH_2MgHal$  を有するグリニヤール試薬 (式中、 $R^{23}$  は水素原子または  $O_1-O_4$  アルキル基を示し、Hal は前記と同意義を示すが好適には臭素原子である。) と反応させる工程である。反応は通常室温または冷却下に行われる。反応は溶媒中で実施するのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はなく、好適にはジエチルエーテル、テトラヒドロフランのようなエーテル類である。

また、化合物 (In) において  $R^{23}$  がニトロ基を示す化合物は、ホルミル化合物 (Ik) とニトロメタンとを、Bull. Chem. Soc. Japan, 41, 1444 (1968) に記載の方法に従つて反応させることにより、工程 N2 において製造することができる。

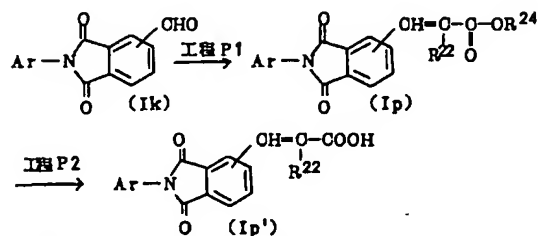
化合物 (In) において  $R^{23}$  が脂肪族アシル基を示す化合物も、ホルミル化合物 (Ik) を式  $OH_3-$

る。反応は通常加熱下に実施される。また所望により、合成した化合物 (In') を酸化剤と反応させることによつて相当するエポキシ化合物 (In'') に工程 N5 において変換することができる。酸化剤は一般にエチレン型の二重結合をエポキシ基に変換できるものであれば特に限定はないが、好適には  $m$ -クロロ過安息香酸または過安息香酸である。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはクロロホルム、塩化メチレンのようなハロゲン化炭化水素類である。反応温度および反応時間は種々の要因に基づき変化するが、 $m$ -クロロ過安息香酸を使用した場合には、通常室温または  $50^\circ\text{C}$  以下の加熱下に反応は実施される。

また、所望により、合成したヒドロキシ化合物 (In) を酸化することによつてアシル化合物 (In''') に変換することもできる。反応条件、反応試薬および溶媒は製法 K における工程 K1 に記載の方法と同様である。

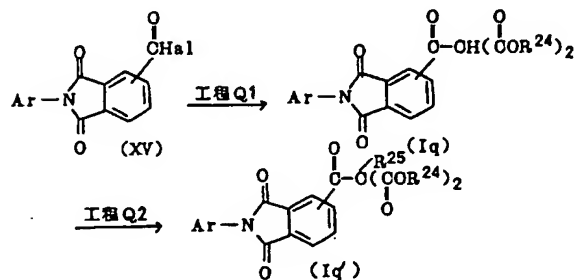
## 製法 P

化合物(I)において $R^4$ が置換されたアルケニル基を示す化合物(Ip)および(Ip')は下記の反応式に従つて製造することができる。



上記式中、Arは前記と同意義を示し、 $R^{22}$ は製法Mにおける定義と同意義を示し、 $R^{24}$ はメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、sec-ブチル、t-ブチルのような $O_1-O_4$ アルキル基を示す。

工程P1は、化合物(XIV)を水素化ナトリウムのような強塩基で処理しカルバニオンを生成させ、これを化合物(Ik)と室温または加熱下に反応させる工程である。



上記式中、Ar, Halおよび $R^{24}$ は前記と同意義を示し、 $R^{25}$ は有機基を示し、好ましくは前記の置換されていてもよいアルキル基、アルケニル基またはアルキニル基を示す。

工程Q1は、製法Bで合成した化合物(XV)を式 $R^{24}OMgOH(COOR^{24})_2$ を有するグリニヤール化合物と反応させる工程である。式中、 $R^{24}$ は前記と同意義を示し、3つの $R^{24}$ は同一または異なつてもよい。このグリニヤール試薬は、Org. Syn. Col. Vol. IV, 708(1963)に記載の方法に従つて合成される。反応は通常、適当な溶媒中で加熱下に実施される。



(式中、 $R^{22}$ および $R^{24}$ は前記と同意義を示し、上記式中の3つの $R^{24}$ は同一または異なつてもよい。)2つの反応は溶媒中で、続けて行われるのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはジエチルエーテル、テトラヒドロフランのようなエーテル類またはジメチルホルムアミドである。

所望により、合成した化合物(Ip)を加水分解し相当する酸(Ip')に変換することができる。反応は通常適当な溶媒中で、酸を使用し室温または加熱下に実施される。

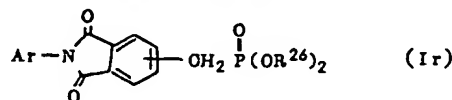
## 製法 Q

化合物(I)において $R^4$ がジ(アルコキシカルボニル)置換アルキル基を示す化合物(Iq)および(Iq')は下記反応式に従つて製造することができる。

所望により、合成した化合物(Iq)は、式 $R^{25}$  Halを有する化合物、例えば2-プロペニルプロミドと反応させることにより、化合物(Iq')とすることができる。反応は通常、アルカリ金属炭酸塩のような塩基(例えば炭酸ナトリウムまたは炭酸カリウム)の存在下、加熱して実施される。反応は溶媒中で行うのが好適で、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好ましくはジオキサンのようなエーテル類およびアセトニトリルのようなニトリル類である。

## 製法 R

化合物(I)において $R^4$ がジ( $O_1-O_3$ アルコキシ)ホスホリル置換メチル基を示す化合物(Ir)は、製法Bにおいて合成された化合物(Ie')と、トリアルキルホスファイトとを通常90~100℃で反応させることによつて製造することができる。

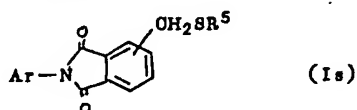


(式中、Arは前記と同意義を示し、 $R^{26}$ は $O_1-$  $O_3$ アルキル基を示す。) トリアルキルホスファイトは通常化合物(Ie')に対し過剰に用いるのが好ましい。

$R^4$ がジアルコキシホスホリル置換アルキル基( $O_2$ 以上のアルキル基)を示す化合物も、相当するハロゲン化アルキル基を有する原料から同様に製造することができる。

#### 製法 S

化合物(I)において $R^4$ がメルカプトメチル基を示す化合物(Is)は、製法Eにおいて合成した化合物(Ie')と式 $R^5SH$ を有するチオール化合物とを、適当な溶媒中で反応させることによつて製造することができる。

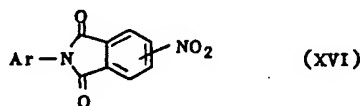


(式中、Ar および  $R^5$  は前記と同意義を示す)  
チオール化合物は、好ましくは金属チオラートさらに好ましくはナトリウムチオラートのよう

メタノールのような低級アルコール類を使用し、通常室温または加熱下に実施し、化合物(It)を得る。このものは、更に式 $Hal\cdot OOCOR^{24}$ を有する化合物と、好適にはアセトンのようなケトン類を溶媒として、脱酸剤の存在下に反応させて、化合物(It')が得られる。好適な脱酸剤は製法Fに記載したものであるが、この場合において特に好適なものは、アルカリ金属炭酸塩またはトリエチルアミンのような有機アミン類である。

#### 製法 U

化合物(I)において $R^4$ がアミノ基またはモノ若しくはジアルミノ基を示す化合物は、化合物(XVI)のニトロ基をアミノ基に変換し、また所望によりアミノ基をアシル化することにより製造することができる。

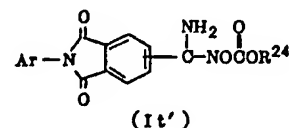
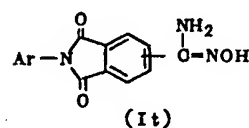


第一工程はニトロ化合物(XVI)を、酸と溶媒の混合液中で、金属または金属塩化物と反応させ

なアルカリ金属チオラートの形で反応させるのがよい。溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはエタノールのようなアルコール類、アセトンのようなケトン類またはテトラヒドロフランのようなエーテル類である。反応温度も特に限定はないが通常は室温で実施するのが好ましい。

#### 製法 T

化合物(I)において $R^4$ が $N^2$ -ヒドロキシアミジノ基またはアシルヒドロキシアミジノ基をそれぞれ示す化合物(It)および(It')は、製法Dにおいて合成したシアノ化合物(Id)とヒドロキシルアミンとを反応させ、また所望によりアシル化することにより製造することができる。



(式中、Ar および  $R^{24}$  は前記と同意義を示す)  
反応は溶媒中で行うのが好ましく、好適には

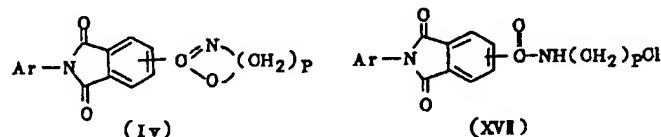
る工程である。好適な金属亜鉛、鉄またはスズであり、好適な金属塩化物は塩化第二スズである。好適な酸は酢酸または塩酸であり、好適な溶媒はエタノールのようなアルコール類またはジオキサン、テトラヒドロフランのようなエーテル類である。

また、アミノ化合物は化合物(XVI)の接触還元によつても得ることができる。好適な触媒はパラジウム炭素であり、溶媒中で反応を行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはメタノール、エタノールのようなアルコール類である。

かくして合成されたアミノ化合物は、例えば式 $R^{24}OOHal$ を有する化合物と、脱酸剤と好ましくは適当な溶媒の存在下に反応させることによりアミノ誘導体に変換することができる。脱酸剤と溶媒は製法Fにおいて記載したものをを用いるのが好ましく、反応は通常室温または加熱下に実施される。出発原料(XVI)は製法Aに記載の方法に従つて製造される。

製法 V

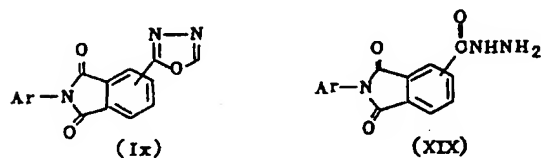
化合物(I)において $R^4$ が特定の複素環式基を示す化合物(Iv)は、化合物(XVII)と脱酸剤とをJ. Org. Chem., 39, 2787 (1974)に記載の方法に従つて反応させることにより製造することができる。



(式中、Arは前記と同意義を示し、Pは2乃至4の整数を示し、好ましくは2または3である。) 好適な脱酸剤は炭酸カリウムのようなアルカリ金属炭酸塩である。反応は溶媒中で行うのが好ましく、溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類またはアセトンのようなケトン類である。出発原料(XVII)は製法Oに記載された方法に従つて製造される。

製法 W

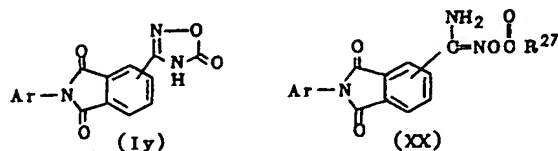
化合物(I)において $R^4$ がオキサジアゾリル基を



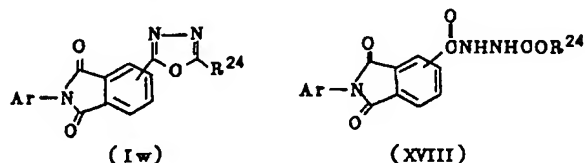
(式中、Arは前記と同意義を示す。) 好適な閉環試薬は、オルトクロル燐酸エチルのようなオルトクロル燐酸エステル類またはホルムアルデヒド(ホルマリン若しくはパラホルムアルデヒドの形で使用する。)であり、特にオルトクロル燐酸エステル類が好ましい。閉環試薬は、通常、過剰量用いられ、反応は加熱下に実施するのが好適である。

製法 Y

化合物(I)において $R^4$ がオキシ置換のオキサジアゾリル基を示す化合物(Iy)は、化合物(XX)を塩基と、室温下、適当な溶媒中で反応させることによつて製造することができる。



示す化合物(Iw)は化合物(XVIII)と脱水剤とを通常、加熱下に反応させることにより製造することができる。



(式中、Arおよび $R^{24}$ は前記と同意義を示す)

好適な脱水剤はオキシ塩化リン、塩化チオニルまたは五酸化リンであり、特に好適にはオキシ塩化リンである。脱水剤は過剰に用いるのが好ましい。

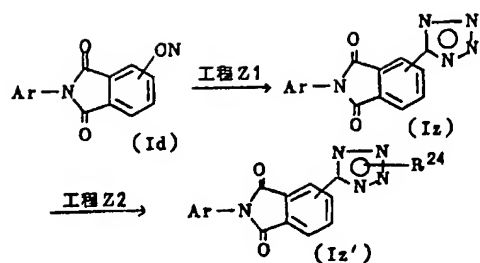
製法 X

化合物(I)において $R^4$ が置換されていないオキサジアゾリル基を示す化合物(Ix)は、化合物(XIX)を、炭素原子を1つ挿入しうる適当な閉環試薬と反応させることによつて製造することができる。

(式中、Arは前記と同意義を示し、 $R^{27}$ は脱離基を示す。)  $R^{27}$ で示される好適な脱離基は、メトキシ、エトキシ、ブトキシのような $O_1-O_4$ 低級アルコキシ基、フェノキシ、ベンジルオキシのようなアールオキシ基若しくはアラルコキシ基または塩素原子のようなハロゲン原子である。好適な塩基は、ナトリウムメトキシドのようなアルカリ金属アルコキシド類、水素化ナトリウムのようなアルカリ金属水素化物または金属水酸化物(好適には水酸化ナトリウムのようなアルカリ金属水酸化物)である。ナトリウムアルコキシドを塩基として使用した場合には、相当するアルコールを反応溶媒として用いるのが好ましい。

製法 Z

化合物(I)において $R^4$ が置換されていてもよいテトラゾリル基を示す化合物(Iz)および(Iz')は、下記の反応式に従つて製造することができる。



上記式中、Ar および  $\text{R}^{24}$  は前記と同意義を示す。出発原料 (Id) は製法 D に記載された方法に従って製造される。

工程 Z1 は、化合物 (Id) とアジ化ナトリウムのようなアジド類とを、適当な溶媒中で室温または加熱下に反応させる工程である。溶媒は反応を阻害しないものであれば特に限定はないが、好適にはベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類、石油エーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジエチルエーテルのようなエーテル類またはジメチルホキシド若しくはジメチルホルムアミドのような極性溶媒である。反応後、化合物 (Iz) は通常反応に使用したアジ化塩に相

当する金属塩の形で得ることができるが、塩酸または硫酸のような酸で処理することにより遊離の化合物 (Iz) を得ることができる。アルキル化された化合物 (Iz') は、化合物 (Iz) とアルキル化剤とを適当な溶媒中で脱酸剤を使用して反応させることにより合成することができる。脱酸剤は、製法 F において記載したものが使用され、好適には炭酸ナトリウムである。好適なアルキル化剤は、沃化メチルのような沃化アルキル類、ジメチル硫酸のようなジアルキル硫酸類、トリアルキルホスフェート類、P-トルエンスルホン酸アルキルエステル類またはトリフルオロ酢酸アルキルエステル類である。反応は通常加熱下に実施される。

上記の種々の反応後、目的化合物は常法に従って反応液中から精製することができる。2 以上の反応を続けて実施する必要がある場合には中間体を単離することなく反応を同一反応器中で続けて行うこともできる。

式 (I) の化合物は、農業用殺菌剤として土壌施

用又は散布によつて植物の病気に対して治療的かつ保護的效果を示す。とくに、十字科植物に発生して従来防除が困難であつた根こぶ病に卓効を示す。また稲作の重要病害である稲紋枯病に有効であり、或いはリゾクトニア菌に起因するビート、棉、ウリ類等各種作物の苗立枯病及びトマトの輪紋病にも有効である。

本発明の化合物は、担体および必要に応じて他の補助剤と混合して、農業用殺菌剤として通常用いられる製剤形態、例えば、粉剤、粗粉剤、微粒剤、粒剤、水和剤、乳剤、懸濁剤、水溶剤、等に調製されて使用される。ここでいう担体とは、処理すべき部位へ有効成分化合物の到達性を助け、また、有効成分化合物の貯蔵、輸送あるいは取り扱いを容易にするために、農業用殺菌剤中に混合される合成または天然の無機または有機物質を意味する。

適当な固体担体としては、カオリナイト群、モンモリロナイト群あるいはアタパルジヤイト群等で代表されるクレー類、タルク、雲母、葉

ロウ石、軽石、パーミューキライト、石こう、炭酸カルシウム、ドロマイト、けいそう土、マグネシウム石灰、りん灰石、セオライト、無水ケイ酸、合成ケイ酸カルシウム、等の無機物質、大豆粉、タバコ粉、クルミ粉、小麦粉、木粉、でんぷん、結晶セルロース等の植物性有機物質、クマロン樹脂、石油樹脂、アルキド樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリアルキレングリコール、ケトン樹脂、エステルガム、コーパルガム、ダンマルガム等の合成または天然の高分子化合物、カルナバロウ、密ロウ等のワックス類、あるいは尿素等があげられる。

適当な液体担体としては、クロシン、鉱油、スピンドル油、ホワイトオイル等のパラフィン系もしくはナフテン系炭化水素、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、クメン、メチルナフタリン等の芳香族炭化水素、四塩化炭素、クロロホルム、トリクロルエチレン、モノクロルベンゼン、o-クロルトルエン等の塩素化炭化水素、ジオキサン、テトラヒドロフラ

ンのようなエーテル類、アセトン、メチルエチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン、アセトフェノン、イソホロン等のケトン類、酢酸エチル、酢酸アミル、エチレングリコールアセテート、ジエチレングリコールアセテート、マレイン酸ジブチル、コハク酸ジエチル等のエステル類、メタノール、ローヘキサノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、シクロヘキサノール、ベンジルアルコール等のアルコール類、エチレングリコールエチルエーテル、エチレングリコールフェニルエーテル、ジエチレングリコールエチルエーテル、ジエチレングリコールブチルエーテル等のエーテルアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の極性溶媒あるいは水等があげられる。

乳化、分散、湿潤、拡張、結合、崩壊性調節、有効成分安定化、流動性改良、防錆等の目的で使用される界面活性剤は、非イオン性、陰イオン性、陽イオン性および両性イオン性のいずれ

シドとプロピレンオキシドを重合付加させたもの等があげられる。適当な陰イオン性界面活性剤としては、たとえば、ラウリル硫酸ナトリウム、トレイルアルコール硫酸エステルアミン塩等のアルキル硫酸エステル塩、スルホコハク酸ジオクチルエステルナトリウム、2-エチルヘキセンスルホン酸ナトリウム等のアルキルスルホン酸塩、イソプロピルナフタレンスルホン酸ナトリウム、メチレンビスナフタレンスルホン酸ナトリウム、リグニンスルホン酸ナトリウム、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム等のアリールスルホン酸塩等があげられる。

さらに、本発明の農業用殺菌剤には製剤の性状を改善し、生物効果を高める目的で、カゼイン、ゼラチン、アルブミン、ニカワ、アルギン酸ソーダ、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリビニルアルコール等の高分子化合物や他の補助剤、例えば活性炭、サイクロデキストリン、固型パラフィンまたはステアリン酸のような高

のものをも使用しうるが、通常は非イオン性および（または）陰イオン性のものが使用される。適当な非イオン性界面活性剤としては、たとえば、ラウリルアルコール、ステアリルアルコール、オレイルアルコール等の高級アルコールにエチレンオキシドを重合付加させたもの、イソオクチルフェノール、ノニルフェノール等のアルキルフェノールにエチレンオキシドを重合付加させたもの、ブチルナフトール、オクチルナフトール等のアルキルナフトールにエチレンオキシドを重合付加させたもの、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸等の高級脂肪酸にエチレンオキシドを重合付加させたもの、ステアリルりん酸、ジラウリルりん酸等のモノもしくはジアルキルりん酸にエチレンオキシドを重合付加させたもの、ドデシルアミン、ステアリン酸アミド等のアミンにエチレンオキシドを重合付加させたもの、ソルビタン等の多価アルコールの高級脂肪酸エステルおよびそれにエチレンオキシドを重合付加させたもの、エチレンオキ

級脂肪酸等を併用することもできる。

上記の担体および種々の補助剤は製剤の剤型、適用場面等を考慮して、目的に応じてそれぞれ単独にあるいは組合わせて適宜使用される。

粉剤は、例えば有効成分化合物を通常0.1ないし25重量部含有し、残部は固体担体である。

水和剤は、例えば有効成分化合物を通常5ないし90重量部含有し、残部は固体担体、分散湿潤剤であつて、必要に応じて保護コロイド剤、チキソトロピー剤、消泡剤等が加えられる。

粒剤は、例えば有効成分化合物を通常0.1ないし35重量部含有し、残部は大部分が固体担体である。有効成分化合物は固体担体と均一に混合されているか、あるいは固体担体の表面に均一に固着もしくは吸着されており、粒の径は約0.05ないし1.7mm程度である。

乳剤は、例えば有効成分化合物を通常5ないし50重量部含有しており、これに約5ないし20重量部の乳化剤が含まれ、残部は液体担体であり、必要に応じてその他補助剤が加えられる。

このようにして種々の剤型に調製された本発明の農業用殺菌剤を、たとえば、畑地又は水田において農作物に病気の発生する前または発生後に作物の茎葉に散布、または土壌もしくは水面に施用するときは、10aあたり有効成分として1ないし5000g好ましくは10~1000gを投ずることにより、有効に病害を防除することができる。

また、本発明の農業用殺菌剤を種子処理、たとえば種子粉衣剤として使用するときには、種子重量あたり有効成分として0.01%~2%好ましくは0.1~0.5%を粉衣することにより、有効に土壌もしくは種子伝染病害を防除できる。

本発明の農業用殺菌剤は、殺菌スペクトラムを広げるために他の農業用殺菌剤が配合されることは好ましく、場合によつては相乗効果を期待することもできる。

このような他の殺菌剤の例としては、たとえば、チオフアネート、チオフアネートメチル、ベノミル、カルベンダゾール、ハイメキサゾー

ル、殺ダニ剤、除草剤、植物生長調節剤、殺線虫剤、殺バクテリア剤、土壌改良剤、改良資材、ペーパーボット、合成培土、堆肥もしくは化学肥料等と適宜混合して使用することもできる。次に式(I)を有する化合物の製造法を実施例によつて説明する。

**実施例 1.** 3-カルボキシー-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号11)

無水トリメリット酸1.92gをメチルイソブチルケトン15mlに攪拌下加熱溶解させた後、2,6-ジイソプロピルアニリン1.8gを加え、水分離装置を付け3時間加熱還流した。反応終了後、溶媒を減圧下留去し得られる粗イミドを30%含水エタノールより再結晶して、融点274~275℃の目的化合物3gを得た。

**実施例 2** 3-クロロホルミル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号44)

3-カルボキシー-N-(2,6-ジイソプロピ

ル、テクロフタラム、クロロタロニル、フェンチンハイドロキサイド、キャプタン、キャプタホル、サーラム、エディフェンホス、トリシクラゾール、IBP、PONB、フサライド、カスガイシン、ピンクログリン、プロシミドン、イソプロチオラン、プロベナゾール、ピロキロン、クロベンチアゾン(8-1901)、メタラキシル、エクロメゾール、イプロジオン、プロピコナゾール、エタコナゾール、トリアジメホン、プロクロラツツ、4-メチルスルホニルオキシフェニル N-メチルチオールカーバメート(NK-191)、N-(1-ブトキシ-2,2,2-トリクロロエチル)サリシルアミド(NK-483)等の殺菌剤があげられるが、これらに限られるものではない。さらに必要に応じて他の殺虫剤、たとえば、イソキサチオン、フェニトロチオン、ダイアジノン、トリクロルホン、ダイスルホトン、アセフエート、カルバリール、プロボクシユア、メソミル、チオシクラム、カルタップ、ピレスリン、アレスリン、フェンバレレート等、また

ルフエニル)フタルイミド2gをベンゼン30mlに懸濁し、塩化チオニル1.4gを加え2時間加熱還流した。反応混合物より溶媒及び過剰の塩化チオニルを減圧下留去して、融点148-150℃の目的化合物2.1gを得た。

**実施例 3** N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-メトキシカルボニルフタルイミド(化合物番号65)

3-クロロホルミル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド2gをベンゼン15mlに溶解した後、メタノール5mlを加え2時間加熱還流した。溶媒留去後得られる粗結晶をメタノールより再結晶して、融点173-173.5℃の目的化合物1.9gを得た。

**実施例 4** 3-カルバモイル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号153)

3-クロロホルミル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド2gをテトラヒドロフラン10mlに溶解した後、氷冷下攪拌しな



がアンモニアを滴下した。反応混合物のpHを7とした後、室温で更に1時間攪拌した。反応混合物を水中に投入し、酢酸エチルにて目的化合物を抽出、分取し、水洗した。芒硝で乾燥後、溶媒を減圧下留去し、得られた粗アミドをメタノールより再結晶して融点251-252℃の目的化合物1.8gを得た。

実施例5. 3-シアノ-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号258)

3-カルバモイル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド2.3gをジクロロエタン5mlに溶解した後、オキシ塩化リン1mlを加え攪拌下に2時間加熱還流した。放冷後、反応混合物を氷水中に投入し、酢酸エチルで目的化合物を抽出分取し、水洗した。芒硝で乾燥後、溶媒を減圧下留去し、得られた粗ニトリルをn-ヘキサンより再結晶して融点162-163℃の目的化合物1.8gを得た。

実施例6. N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド-3-カルボン酸ナトリウム塩(化合物番号32)

3-カルボキシ-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド2gを、15mlのテトラヒドロフランに0.39gのナトリウムエトキシドを溶かした液に加え、室温にて2時間攪拌した。反応終了後、溶媒と反応中に生成したエタノールを減圧下留去すると、融点345℃以上の目的化合物2.1gを得た。

実施例7. トリス[N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド-3-カルボン酸]アルミニウム塩(化合物266)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド-3-カルボン酸ナトリウム塩2gをテトラヒドロフラン15mlに溶解した。これに5mlのテトラヒドロフランに0.24gの塩化アルミニウムを溶かした液を加え、室温にて2時間攪拌した。反応終了後、析出した塩化ナトリウムを除去し、母液の溶媒を減圧下留去すると、融点300℃以上の目的化合物1.9gを得た。

実施例8. N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ヒドロキシメチルフタルイミド(化合物280)

8mlのテトラヒドロフランに1.05gの3-クロロホルミル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミドを溶かした液に、65%のリチウムボロンヒドリドを加え、室温にて20分間攪拌した。反応終了後、反応液を2規定塩酸10mlの中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を飽和塩化ナトリウム水溶液で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下溶媒を留去し得られた粗結晶を、ベンゼンから再結晶することによつて、融点187-189℃の目的化合物0.85gを得た。

実施例9. N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-イソプロピルオキシメチルフタルイミド(化合物番号286)

アセトニトリル30mlに、N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ヒドロキシメチルフタルイミド1gを溶解しておき、これにイソブ

チルクロリド0.5gとトリエチルアミン0.45gを室温にて加え、6時間攪拌した。反応終了後、反応液を水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を飽和塩化ナトリウム水溶液で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下留去し粗結晶を得た。ベンゼンとヘキサンの1:1の混液より再結晶し、融点158-159℃の目的化合物0.82gを得た。

実施例10. 3-プロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号307)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ヒドロキシメチルフタルイミド2gをジエチルエーテル50mlに溶解し、これに三臭化リン0.54gを加え、室温にて5時間攪拌した。反応終了後、反応液を水中に注ぎ、ジエチルエーテルで抽出した。抽出液を飽和塩化ナトリウム水溶液で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下留去し粗結晶を得た。結晶をメタノールで洗い、乾燥し、融点201-202℃の目的化

化合物 2.3 g を得た。

実施例 11.

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-メトキシメチルフタルイミド (化合物番号 291)

3-ブロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド 1.2 g をメタノール 10 ml に溶解し、これに 28% ナトリウムメトキシド-メタノール溶液 162 滴を加え、4 時間加熱還流した。反応終了後、反応液を冷却し水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を水で洗い、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサノー酢酸エチル (5:1) の溶媒で展開することにより精製し、融点 128~129℃ の目的化合物 0.7 g を得た。

実施例 12.

3-アミノメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド (化合物番号 308)

3-ブロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド 2 g を塩化メチレン 100 ml に溶解し、冷却撹拌下、アンモニアを

ン 5 ml に溶解し、これにメトキシアセチルクロリド 0.24 g にトリエチルアミン 0.28 g を加え、室温にて 3 時間撹拌した。反応終了後、反応液を水中に注ぎ、塩化メチレンにて抽出し、抽出液を水で洗滌後、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサノー酢酸エチル (2:1) の溶液で展開することにより精製し、融点 167~168℃ の目的化合物 0.75 g を得た。

実施例 15.

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(1-イミダゾリルメチル)フタルイミド (化合物番号 319)

3-ブロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド 1 g をアセトニトリル 50 ml に溶解し、これにイミダゾール 204 滴と炭酸カリウム 1.7 g を加え、1 時間加熱還流した。反応液を冷却後、水中に注ぎ酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、酢酸エチルで展開することにより精製し、

1 g 加え、室温にて 2 日間撹拌した。反応終了後、反応液が中和となるまで、飽和塩化ナトリウム水溶液で洗滌し、減圧下溶媒を留去し粗結晶を得た。粗結晶をヘキサンで洗い乾燥すると、融点 135~137.5℃ の目的化合物 1.75 g を得た。

実施例 13.

3-シクロヘキシルアミノメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド (化合物番号 312)

3-ブロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド 1 g を塩化メチレン 20 ml に溶解し、これにシクロヘキシルアミン 0.28 g とトリエチルアミン 0.28 g を加え、6 時間撹拌した。反応終了後、実施例 12 と同様に処理し、融点 148~149℃ の目的化合物 0.72 g を得た。

実施例 14.

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-メトキシアセトアミドメチルフタルイミド (化合物番号 316)

3-アミノメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド 0.7 g を塩化メチレン

融点 216~218℃ の目的化合物 0.62 g を得た。

実施例 16. N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ホルミルフタルイミド (化合物番号 323)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ヒドロキシメチルフタルイミド 1 g をクロロホルム 25 ml に溶解し、これに活性化した二酸化マンガン 7 g を加え、70℃ で 3 時間撹拌した。反応液を冷却後、過剰の二酸化マンガンを除去し、母液を減圧下乾固した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサノー酢酸エチル (7:3) の溶液で展開することにより精製し、融点 158.5~159.5℃ の目的化合物 0.8 g を得た。

実施例 17.

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ヒドロキシイミノメチルフタルイミド (化合物番号 326)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ホルミルフタルイミド 1 g をメタノール 20 ml に溶解し、これに塩酸ヒドロキシルアミン 0.5 g

を室温にて加え、2時間攪拌した。反応終了後、反応液を減圧下乾固した。残渣をシリカゲルカラムクロマトに付し、ヘキサノー酢酸エチル(4:1)の溶液で展開することにより精製し、融点232~234℃の目的化合物0.67gを得た。

実施例18.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ジメトキシメチルフタリイミド(化合物番号327)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ホルミルフタリイミド1g、オルトギ酸メチル5mlおよびp-トルエンスルホン酸0.1gを混合し、室温にて2時間攪拌した。反応液を水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗滌後溶媒を留去し、粗結晶を得た。ベンゼンから再結晶し、融点154~157℃の目的化合物1gを得た。

実施例19.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(1,3-ジオキサラン-2-イル)フタリイミド(化合物番号328)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-

番号346)

シアン化ナトリウム0.15gをジメチルスルホキシド3mlに溶解し、これに3-ブロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタリイミド1gを加え50℃で10分間攪拌した。反応液を水中に注ぎ酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサノー酢酸エチル(8:1)の溶媒で展開することにより精製し、融点206~209℃の目的化合物0.6gを得た。

実施例22 N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-エトキシカルボニルメチルフタリイミド(化合物番号332)

3-シアノメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタリイミド0.8g、濃硫酸1mlおよびエタノール5mlを混合し、5時間加熱還流した。反応液を冷却後水中に注ぎ酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフ

-ホルミルフタリイミド1gをエチレングリコール3mlとトルエン50mlとに加え、これにp-トルエンスルホン酸0.1gを加え、3時間加熱還流した。反応液を冷却後水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い減圧下溶媒を留去し、粗結晶を得た。ベンゼンから再結晶し、融点189.5~190.5℃の目的化合物を0.81g得た。

実施例20.  
3-(2,2-ジアセチルエチル)-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタリイミド(化合物番号350)

3-ブロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタリイミド2gをアセチルアセトン2gとアセトン50mlとに加え、これに炭酸カリウム2gを加え3時間加熱還流した。反応液を冷却後水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い溶媒を留去し粗結晶を得た。ヘキサノー酢酸エチル(9:1)から再結晶し、融点146~149℃の目的化合物1.43gを得た。

実施例21. 3-シアノメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタリイミド(化合物

番号346)に付し、ヘキサノー酢酸エチル(7:1)で展開することにより精製し、融点160~162℃の目的化合物0.66gを得た。

実施例23 N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(2-エトキシカルボニルエチル)フタリイミド(化合物番号338)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(2-エトキシカルボニルビニル)フタリイミド(実施例31の化合物)2.18gを酢酸エチル25mlに溶解し、これに5%パラジウム炭素0.4gを加え室温にて常圧で接触還元を行つた。パラジウム炭素を濾去し、濾液を減圧下濃縮すると粗結晶が得られた。アセトンより再結晶し、融点133~134.5℃の目的化合物1.7gを得た。

実施例24 3-(2-カルボキシエチル)-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタリイミド(化合物番号330)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(2-エトキシカルボニルエチル)フタリイミド0.65g、ジオキサラン20mlおよび1規定硫酸

15 mlを混合し4時間加熱還流した。反応液を冷却後水中に注ぎ酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い、溶媒を減圧下留去し粗結晶を得た。ヘキサンで結晶を洗い乾燥し、融点183~185℃の目的化合物0.51 gを得た。

実施例 25.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(1-ヒドロキシエチル)フタルイミド(化合物番号351)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ホルミルフタルイミド1 gをジエチルエーテル60 mlに溶解し、これに氷冷下撹拌しながら、1モルのメチルマグネシウムブロミド-テトラヒドロフラン溶液4 mlを加え、室温にて2時間撹拌した。反応終了後、6規定塩酸と酢酸エチルを加え、有機層を分離し、水で洗滌後溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(3:1)の溶液で展開することにより精製し、融点166~167℃の目的化合物0.7 gを得た。

実施例 26.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-

溶媒を減圧下乾固した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(4:1)にて展開することにより精製し、融点170~176℃の目的化合物1.2 gを得た。

実施例 28.  
3-アセチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号355)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(1-ヒドロキシエチル)フタルイミド0.5 gをクロロホルム10 mlに溶解し、二酸化マンガン1 gを加え4時間加熱還流した。反応液を冷却後、二酸化マンガンを濾去し、濾液を減圧下乾固した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(4:1)で展開し精製すると、融点150~151℃の目的化合物0.42 gを得た。

実施例 29.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ビニルフタルイミド(化合物番号360)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(1-ヒドロキシエチル)フタルイミド1 g、p-トルエンスルホン酸0.3 gおよびトルエン30

- (1-ヒドロキシ-2-ニトロエチル)フタルイミド(化合物番号354)

弗化カリウム0.87 gを含むイソプロパノール20 mlにN-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ホルミルフタルイミド1 gを加え溶解させ、さらにニトロメタン1.83 gを加え室温にて5時間撹拌した。不溶物を濾去し、濾液を減圧下乾固した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(4:1)の溶液で展開することにより精製し、融点172~176℃の目的化合物0.6 gを得た。

実施例 27.  
3-(2-アセチル-1-ヒドロキシエチル)-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号353)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ホルミルフタルイミド1.34 g、アセトン4 mlおよびジオキサン10 mlの混合液に、室温にて0.5規定水酸化ナトリウム水溶液0.6 mlを加え8時間撹拌した。反応液を水中に注ぎ、塩酸で酸性にした後酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い

mlを混合し5時間加熱還流した。反応液を冷却後水中に注ぎ酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(8:1)で展開し精製すると、融点80~81℃の目的化合物0.45 gを得た。

実施例 30.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-オキシラニルフタルイミド(化合物番号368)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ビニルフタルイミド0.4 g、m-クロロ過安息香酸1 gおよび塩化メチレン6 mlを混合し、50℃で16時間撹拌した。反応液を冷却後水中に注ぎ塩化メチレンで抽出し、抽出液を水で洗い、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(10:1)で展開し精製すると、融点84~86℃の目的化合物0.18 gを得た。

実施例 31.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(2-エトキシカルボニルビニル)フタルイミド(化合物番号366)

テトラヒドロフランとジメチルスルホキシドの1:1の混合液10mlに、トリエチルホスホアセート0.74gを溶解し、水素化ナトリウム0.144gを加え室温にて15分間撹拌した。さらにN-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ホルミルフタルイミド1gを加え55~60℃で20分間撹拌した。反応液を水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出し、抽出液を水で洗い溶媒を減圧下留去すると粗結晶が得られた。エタノールから再結晶し、融点131.5~132.5℃の目的化合物0.84gを得た。

実施例 32.  
3-ジ(エトキシカルボニル)アセチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号358)

無水エタノールにマグネシウム0.27gを加え、さらに無水ジエチルエーテル2mlおよびマロン酸ジエチル1.76gを加え3時間加熱還流した。加熱を続けながらこの溶液に、3-クロロホルミル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド3.69gを5mlのテトラヒドロフラ

ル)-3-ジメトキシホスホリルメチルフタルイミド(化合物番号369)

3-プロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド0.6gとトリメチルホスファイト2mlを混合し、90~100℃で1時間撹拌した。過剰のトリメチルホスファイトを減圧下留去すると粗結晶が得られた。ジイソプロピルエーテルから再結晶し、融点133~134℃の目的化合物0.46gを得た。

実施例 35.  
3-ジエトキシホスホリルチオメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号370)

3-プロモメチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド0.7gをアセトン20mlに溶解し、O,O-ジエチルチオホスファイト-9-カリウム塩0.36gを加え、室温にて3時間撹拌した。反応液を水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を水で洗い、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサノン-酢酸エチル(2:1)

ンに溶かした液を加えさらに1時間加熱還流した。反応液を冷却後水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を水で洗い、溶媒を減圧下留去すると粗結晶が得られた。エタノールから再結晶し、融点114~122.5℃の目的化合物4.5gを得た。

実施例 33.  
3-[2,2-ジ(エトキシカルボニル)-4-ペンテノイル]-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号359)

3-ジ(エトキシカルボニル)アセチル-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド1gをアセトニトリル30mlに溶解し、アリルブロミド0.5gおよび炭酸カリウム1gを加え、1時間加熱還流した。反応液を冷却後水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を水で洗い、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサノン-酢酸エチル(9:1)で展開し精製すると、融点106.5~107.5℃の目的化合物0.25gを得た。

実施例 34. N-(2,6-ジイソプロピルフェニ

ル)で展開し精製すると、融点80~82℃の目的化合物0.6gを得た。

実施例 36.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(N-ヒドロキシアミジノ)フタルイミド(化合物番号375)

塩酸ヒドロキシルアミン0.42g、メタノール20mlおよび28%ナトリウムメトキシド-メタノール溶液0.38gを10分間混合した。これに、3-シアノー-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド2gをメタノール30mlに溶かした液を加え、室温にて2時間撹拌した。減圧下、溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサノン-酢酸エチル(2:1)で展開し精製すると、融点233~234℃の目的化合物1.6gを得た。

実施例 37.  
3-アミノ-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号382)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ニトロフタルイミド3.5gをテトラヒドロフラン30mlに溶解し、氷冷した。これに、撹拌下塩

化第一スズ9gを濃塩酸8mlに溶かした液を加えさらに3時間撈拌を続けた。反応液を水中に注ぎ、炭酸水素ナトリウムを加えてpHを中性にした。析出した固体を濾去し、濾液をクロロホルムで抽出した。抽出液を水で洗い、溶媒を留去すると粗結晶が得られた。少量のヘキサンを含むベンゼンより再結晶し、融点266~267℃の目的化合物2.8gを得た。

実施例38.  
3-アセトアミド-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド(化合物番号385)

3-アミノ-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド0.17gをベンゼン10mlに溶解し、アセチルブロミド65mgおよびトリエチルアミン53mgを加え、室温にて1時間撈拌した。ベンゼンを留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(1:1)で展開し精製すると、融点237~238℃の目的化合物0.16gを得た。

実施例39.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(2-オキサゾリニル)フタルイミド(化合物番号390)

目的化合物0.8gを得た。

実施例41.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(2-メチル-1,3,4-オキサジアゾール-5-イル)フタルイミド(化合物番号394)

3-(2-アセチルヒドラジノカルボニル)-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド1g(実施例4において、アンモニアの代わりに、アセチルヒドラジンを使用して合成)とオキシ塩化リン7mlを混合し、100~110℃で3時間加熱撈拌した。反応液を冷却後、実施例40に記載の方法と同様に処理し、融点213~214℃の目的化合物0.35gを得た。

実施例42.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(5-オキソ-1,2,4-オキサジアゾール-3-イル)フタルイミド(化合物番号395)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(N-エトキシカルボニルオキシアミジノ)フタルイミド(実施例45の化合物)、メタノール10mlおよびナトリウムメトキシド0.1gを混合し、室温で20分間撈拌した。反応液を水中に注

物番号390)

3-(2-クロロエチルカルバモイル)-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド0.5gをアセトン30mlに溶解し、炭酸カリウム0.3gを加え、室温にて4時間撈拌した。反応液を水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を水で洗い、減圧下溶媒を留去すると結晶が得られた。エタノールより再結晶し、融点190~191℃の目的化合物0.35gを得た。

実施例40.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(1,3,4-オキサジアゾール-2-イル)フタルイミド(化合物番号393)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-ヒドラジノカルボニルフタルイミド1.5gとオルソクロロギ酸エチル10mlを混合し、10時間加熱還流した。反応液を冷却後、水中に注ぎ、酢酸エチルで抽出した。抽出液を水で洗い、溶媒を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、ヘキサン-酢酸エチル(5:1)で展開し精製すると、融点141~142

ぎ、塩酸で中性にして、酢酸エチルで抽出した。抽出液を水で洗い、溶媒を留去し、実施例40に記載の方法と同様に処理し、融点220~221℃の目的化合物0.4gを得た。

実施例43.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(1H-テトラゾール-5-イル)フタルイミド(化合物番号396)

塩化アルミニウム1.8g、アジ化ナトリウム2.64gおよび3-シアノ-N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)フタルイミド1.5gをこの順番で、氷冷無水テトラヒドロフラン30mlに加えていった。その後反応液を5時間加熱還流した。冷後、氷水中に注ぎ、pHを塩酸を用いて中性にした。酢酸エチルで抽出し、水で洗い、溶媒を留去すると結晶が得られた。ベンゼンより再結晶し、融点145~146℃の目的化合物1.55gを得た。

実施例44.  
N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(メチル-1H-テトラゾール-5-イル)フタルイミド(化合物番号269)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3

—(1H-テトラゾール-5-イル)フタルイミド 1 g をジオキサン 20 ml に溶解し、沃化メチル 0.57 g と炭酸カリウム 0.37 g を加え、1 時間加熱還流した。反応液を冷却後、実施例 40 に記載の方法と同様に処理し、融点 196~197℃ の目的化合物 0.42 g を得た。

実施例 45

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(N-エトキシカルボニルオキシアミジノ)フタルイミド (化合物番号 376)

N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-3-(N-ヒドロキシアミジノ)フタルイミド 0.5 g をアセトン 20 ml に溶解し、クロロギ酸エチル 0.15 g とトリエチルアミン 0.14 g を加え、室温で 3 時間撹拌した。不溶物を濾去し、濾液を減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、塩化メチレンで展開し精製すると、融点 111~112℃ の目的化合物 0.55 g を得た。

次に本発明の農業用殺菌剤の製剤例をあげる。文中、単に部とあるのは全て重量部を意味する。

かきまぜながら固形パラフィン (mp 68~70℃) の熔融液 20.0 部を注加して基粒の表面を被覆した。被覆が完了したときジャケットに水を通して冷却し、主剤を 25% 含有する薬害を軽減した被覆粒剤を得た。

#### 実施例 49. 粒 剤

実施例 48 における固形パラフィンにかえてステアリン酸 (mp 64~70℃) を使用した以外は実施例 7 と同じ方法により、化合物番号 11 の化合物を 25% 含有する薬害を軽減した被覆粒剤を得た。

#### 実施例 50. 粒 剤

化合物番号 (258) 化合物 5 部、ペントナイト 20 部、リグニンスルホン酸カルシウム 1 部及びクレ-74 部を混合し、適量の水を加え練合し、スクリーン押出型造粒機により造粒後乾燥整粒して粒剤を得た。

#### 実施例 51. 水和剤

化合物番号 (166) の化合物 50 部、ホワイトカーボン 5 部、ソルボール AO-24950 (東邦化学社商品名) 5 部及びクレ-40 部を混合機中で均一に

#### 実施例 46. 粉 剤

化合物番号 11 の化合物 25 部、タルク 47.5 部、クレ-47 部及びホワイトカーボン 3 部を混合機中で均一に混合し、ハンマーミルで粉碎して粉剤を得た。

#### 実施例 47. 粉 剤

化合物番号 (153) の化合物 5 部、活性炭 25 部、タルク 30 部及びクレ-40 部を混合機中で均一に混合し、ハンマーミルで粉碎して持続性の粉剤を得た。

#### 実施例 48. 粒 剤

カガライト 2 号 (軽石系破碎粒状物、シルバー産業製) 77.5 部をジャケット付リボンミキサーに仕込み、かきまぜながら予め調製した化合物番号 11 の化合物 25 部をアセトン 20.0 部に溶解した溶液を加えて十分に混合して均一に吸着させた。リボンミキサーのジャケット部に水蒸気を通し、かきまぜながらアセトンを揮散除去し、化合物番号 11 の化合物を吸着した基粒を調製した。次いで基粒の品温を 50~60℃ に保持し、

混合し、ハンマーミルで粉碎して水和剤を得た。

#### 実施例 52. 乳 剤

化合物番号 (81) の化合物 10 部、キシレン 10 部、パラコール P8-2 (日本乳化剤社商品名) 12 部及びシクロヘキサノン 68 部を混合し、均一に溶解させて乳剤を得た。

次に本発明の化合物の農業用殺菌剤としての効果を示す試験例をあげる。

#### 実施例 53. 白菜根こぶ病防除試験 (土壌混和)

根こぶ病 (病原菌 *Plasmodiophora brassicae*) に罹病した白菜根を摩砕して土壌に混合し、根こぶ病菌汚染土壌を作成した。その病原菌汚染土壌に供試化合物を対土 12.5 ppm となるように混和して 300 ml 容ポットに入れ、白菜種子 (品種無双) を播種した (1 ポットに 5 粒播種し、出芽後 1 本仕立とした)。温室内で 45 日間育苗した後抜き取り、根部の発病程度を下記の基準で調査し、一区 5 ポットの平均発病程度として第 1 表に示した。

発病程度 0. 根こぶを着生しない

- 発病程度 1. 側根に根こぶを作るが小さく少ない
- " 2. 側根に小さな根こぶを沢山作る、あるいは大きな根こぶを作る
- " 3. 主根に小さな根こぶを作る、側根の根こぶは少ない
- " 4. 主根に大きな根こぶを作る、側根の根こぶ中程度
- " 5. 主根・側根に大きな根こぶを沢山作る

なお、この試験では、式(I)を有する本願発明の化合物に加えて、「従来の技術」で引用した各公開公報に記載された、下記 A ないし M の化合物を対照として試験した。

化合物 A : N-(2,6-ジエチルフエニル)-2-メチルフタルイミド

化合物 B : N-(2,6-ジエチルフエニル)-3-メチルフタルイミド

化合物 C : N-(2,6-ジイソプロピルフエニル)-2-メチルフタルイミド

イミド

化合物 M : N-(2,6-ジイソプロピルフエニル)-3-メトキシフタルイミド

第 1 表

化合物番号	根こぶ病発病程度	化合物番号	根こぶ病発病程度
2	0.8	41	0
4	0.6	44	0
5	0	52	1.8
6	1.2	58	1.6
8	0	59	0.4
9	0	60	1.2
11	0	61	0.4
21	1.4	62	0
25	0	63	0
26	1.0	65	0
32	0	70	0.8
34	0	75	0
35	1.2	77	0
38	0	78	0

ミド

化合物 D : N-(2,6-ジイソプロピルフエニル)-3-メチルフタルイミド

化合物 E : 2-クロル-N-(2,6-ジエチルフエニル)フタルイミド

化合物 F : 3-クロル-N-(2,6-ジエチルフエニル)フタルイミド

化合物 G : 2-クロル-N-(2,6-ジイソプロピルフエニル)フタルイミド

化合物 H : 3-クロル-N-(2,6-ジイソプロピルフエニル)フタルイミド

化合物 J : N-(2,6-ジエチルフエニル)-2-メトキシフタルイミド

化合物 K : N-(2,6-ジエチルフエニル)-3-メトキシフタルイミド

化合物 L : N-(2,6-ジイソプロピルフエニル)-2-メトキシフタルイミド

化合物番号	根こぶ病発病程度	化合物番号	根こぶ病発病程度
79	0	106	0
81	0	108	0
82	0	109	0
83	0	110	0
84	0	111	1.2
85	0	112	0
86	0	113	0
87	0	114	0
88	0	115	1.0
91	0	121	0
93	0	123	0
95	0	124	1.4
96	0	126	0
97	0	127	0
98	0	128	0
99	0	129	0
100	0	130	2.4
101	0	134	0.4
102	0.8	135	0
103	0	136	0
104	0	137	0
105	1.0	138	0.6



化合物番号	根こぶ病発病程度	化合物番号	根こぶ病発病程度
139	1.4	188	0
141	0.4	189	0
142	0	190	0
143	0	191	0
144	0	193	1.4
145	0	194	0
149	0	195	0
150	0.4	196	0.2
151	0	197	0.8
152	0	199	1.0
153	0	200	1.0
160	0	203	0
161	1.4	210	1.2
162	0	216	0
163	0	229	0
164	0	232	0
166	0	236	0.4
174	0.8	238	0
176	0	239	0
177	1.0	240	0
179	1.0	242	0
182	0	243	0

化合物番号	根こぶ病発病程度	化合物番号	根こぶ病発病程度
244	0	287	0
245	0.4	288	1.0
246	0	289	0
248	0	290	0
256	0	292	1.0
257	0	293	0.5
258	0.2	294	0.8
264	0	295	0
265	0	297	0
266	0	299	0.4
267	0	300	0.4
271	0	301	0.8
275	0	304	0
276	0	305	0
277	0.5	306	1.3
278	0	307	0
279	0	308	0
280	0	310	1.4
283	0	311	1.0
284	0	313	0
285	0	314	0
286	0	316	0.8

化合物番号	根こぶ病発病程度	化合物番号	根こぶ病発病程度
317	0.5	365	0
318	0	366	0
321	1.0	367	0
322	0	368	0
323	0	370	0.8
325	1.0	375	0
326	0	387	0
327	1.2	389	0
328	0	390	0
329	0	391	0.4
330	0	393	0
332	0	394	0.8
338	0	395	0
346	0	無処理	5
350	0	A	5
353	0	B	5
354	0	O	5
356	1.4	D	5
359	0	E	5
361	0	F	5
362	0.8	G	5
363	0	H	5

化合物番号	根こぶ病発病程度	化合物番号	根こぶ病発病程度
J	5	L	5
K	5	M	5

## 実施例 54 白菜根こぶ病防除試験（茎葉散布）

根こぶ病菌（*Plasmodiophora brassicae*）で汚染された土壌を、径 9 cm の素焼鉢につめ、白菜種子（品種 無双）を播種し、発芽後間引して 1 鉢当たり 5 本仕立とした。本葉抽出期と 3～4 葉期の 2 回、100 ppm の供試薬液を 1 鉢当たり 10 ml の割合で散布し、温室内で 45 日間栽培した後、実施例 23 の調査基準に従って発病程度を調査した。1 区 2 連制として 1 株当たりの平均発病度を第 2 表に示す。

第 2 表

化合物番号	根こぶ病発病程度	化合物番号	根こぶ病発病程度
6	1.4	78	1.0
11	0.6	153	1.1
65	1.0	258	0.9
75	0.8	無処理	5.0

## 実施例 55. 稲もんがれ病防除試験 (予防散布)

4～5葉期の稲苗 (品種: 日本晴) に3ポット50ml あて 300ppm の供試薬液を散布し、24時間室温に放置した後、予めもんがれ病菌 (*Rhizoctonia solani*) を培養したえんばく粒を稲の茎際に4～5粒置き、25～27℃の湿室に移し、菌接種7日後に発病の程度を病斑形成の高さ (cm) によって調査した。その結果を第3表に示す。

第 3 表

化合物番号	病斑形成の高さ (cm)	化合物番号	病斑形成の高さ (cm)
11	0.9	101	0
41	0	103	6.1
52	4.4	104	0
59	5.6	110	0
61	0.9	112	0
62	0	143	7.5
74	1.4	145	1.6
98	1.5	150	0
99	0	151	0
100	0	152	0

化合物番号	病斑形成の高さ (cm)	化合物番号	病斑形成の高さ (cm)
153	7.4	205	0.8
160	0	206	1.0
162	0	207	1.0
163	0	229	0
166	0	232	0
174	6.8	236	0
175	0	237	3.0
176	5.2	238	2.8
178	7.7	240	1.3
180	0	242	0.4
183	0	243	0
186	3.5	246	0
188	3.5	247	0
191	0	256	0
192	0	257	0
193	0	258	0
194	0	264	3.0
195	0	273	1.4
196	0.6	275	0
200	1.2	276	1.6
203	0	277	2.3
204	0.8	278	0

化合物番号	病斑形成の高さ (cm)	化合物番号	病斑形成の高さ (cm)
279	0	323	0
280	0	325	0
283	2.8	326	0
284	0	329	7.1
285	0	330	0
286	1.4	332	6.5
290	3.1	346	0
292	0	350	3.4
293	1.8	351	0
297	3.0	352	0
298	4.3	354	1.8
304	0.9	355	4.8
307	0	361	0
308	2.0	365	0
309	0	367	0
311	0.9	368	0
312	2.4	369	1.5
315	2.1	373	1.4
316	1.4	374	1.8
317	3.3	375	2.0
319	0.9	378	2.0
320	1.1	381	3.3

化合物番号	病斑形成の高さ (cm)	化合物番号	病斑形成の高さ (cm)
382	2.1	388	0.8
383	0.6	389	3.7
385	1.8	390	0.9
386	0.8	395	0
387	2.3	無処理	23.0

## 実施例 56. キュウリ苗立枯病防除試験 (土壌灌注)

フスマに28℃で2週間培養した苗立枯病菌 (*Rhizoctonia solani*) を土壌に均一に混合し、この土壌を径12cmのポットに入れ、キュウリ (品種: 相模半白) を20粒ずつ播種したのち、上から250ppmの供試薬液を3l/m<sup>2</sup>の割合で灌注した。鉢を25℃の温室に2週間保ち、苗立枯病の発病苗数 (本) を調査した。1区3連制とし、その合計値を第4表に示す。

第 4 表

化合物番号	発病苗数 (本)	化合物番号	発病苗数 (本)
8	3	11	5
9	2	62	10

化合物番号	発病苗数(本)	化合物番号	発病苗数(本)
98	10	230	3
99	14	207	5
100	2	223	11
101	4	232	3
101	5	236	5
149	12	243	9
151	2	244	3
152	2	246	4
153	10	248	2
160	2	255	8
161	3	257	6
163	3	258	13
164	5	277	2
166	0	280	0
174	10	283	5
176	1	291	4
190	2	302	4
195	4	383	9
196	5	無処理	54
199	18		

実施例 57. トマト輪紋病防除試験(予防散布)  
 3～4葉期のトマト苗(品種:福寿2号)に  
 3ポット50ml あて 300 ppm の供試薬液を散布し  
 た。翌日トマト輪紋病菌(*Alternaria solani*)の分  
 生孢子けんだく液を噴霧接種し、22℃の温室に  
 保ち発病させた。菌接種7日後に発病程度を下  
 記の基準により調査し、1区3連制の平均発病  
 程度として第5表に示した。

発病程度 0 : 無発病

1 : 植物体各葉の発病面積率が10%  
以下

2 : 植物体各葉の発病面積率が10～  
50%

3 : 植物体各葉の発病面積率が50%  
以上

第 5 表

化合物番号	発病程度
162	0
173	0
237	0
無処理	3.0

第1頁の続き

⑤Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

A 01 N	43/28		
	43/40	1 0 1	7215-4H
	43/50		
	43/54		
	43/653		
	43/713		
	43/76		
	43/78		
	43/80	1 0 1	
	43/82	1 0 1	
		1 0 4	
	43/84	1 0 1	
	43/86	1 0 1	
	47/10		8519-4H
	47/28		8519-4H
	57/22		7144-4H
C 07 D	401/12		7431-4C
	403/12		7431-4C
	405/12		7431-4C
	413/12		7431-4C
	417/12		7431-4C
	521/00		7822-4C
C 07 F	9/65		B-7055-4H
/(C 07 D	401/12		
	209:00		
	211:00)		
(C 07 D	401/12		
	209:00		
	213:00)		
(C 07 D	403/12		
	209:00		
	233:00)		

⑤Int. Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

(C 07 D 403/12  
209:00  
239:00)  
(C 07 D 403/12  
209:00  
249:00)  
(C 07 D 403/12  
209:00  
257:00)  
(C 07 D 405/12  
209:00  
303:00)  
(C 07 D 405/12  
209:00  
307:00)  
(C 07 D 413/12  
209:00  
261:00)  
(C 07 D 413/12  
209:00  
265:00)  
(C 07 D 413/12  
209:00  
271:00)  
(C 07 D 417/12  
209:00  
277:00)